

**UMR CNRS 6614 CORIA**

## **THÈSE**

présentée par :

**Vincent MOREL**

soutenue le : **21 février 2011**

pour obtenir le grade de :  
**Docteur de l'Université de Rouen**

Discipline : **Physique**  
Spécialité : **Énergétique**

### **Dynamique de la création d'un plasma d'aluminium induit par laser :**

**Élaboration et validation d'un modèle collisionnel-radiatif**

#### **Composition du jury :**

**Rapporteurs :**

Bruno BOUSQUET	Maître de Conférences habilité	UMR CNRS 5798 LOMA Bordeaux
Stéphane PELLERIN	Professeur des Universités	UMR CNRS 6606 GREMI Bourges

**Examinateurs :**

Ioan SCHNEIDER	Professeur des Universités	FRE CNRS 3102 LOMC Le Havre
Djamel BENREDJEM	Professeur des Universités	UPR CNRS 3321 LAC Orsay
Pascale MONIER-GARBET	Docteur habilité	IRFM CEA Cadarache
Daniel L'HERMITE	Docteur	LRSI CEA Saclay

**Membre invité :**

Abdelkrim BOUKHALFA	Professeur des Universités	UMR CNRS 6614 CORIA Rouen
---------------------	----------------------------	---------------------------

**Directeurs de thèse :**

Bruno CHÉRON	Professeur des Universités	UMR CNRS 6614 CORIA Rouen
Arnaud BULTEL	Maître de Conférences habilité	UMR CNRS 6614 CORIA Rouen



# Table des matières

<b>Remerciements</b>	<b>v</b>
<b>Introduction</b>	<b>2</b>
<b>1 Plasmas induits par laser</b>	<b>7</b>
1.1 Généralités sur les plasmas induits par laser	9
1.2 Dynamique d'un plasma induit par laser nanoseconde	13
1.2.1 Seuils en fluence . . . . .	13
1.2.2 Interaction entre le plasma formé et le gaz ambiant . . . . .	19
1.3 Cinétique des plasmas créés par tir laser nanoseconde	23
1.3.1 Cinétique de la phase de création . . . . .	23
1.3.2 Cinétique de la phase de recombinaison . . . . .	31
1.4 Bilan sur les modèles recensés dans la littérature	35
1.5 Dynamique d'un plasma induit par laser femtoseconde	41
<b>2 Modélisation</b>	<b>47</b>
2.1 Modèle découpé A	49
2.1.1 Cas test envisagé . . . . .	49
2.1.2 Diagramme énergétique adopté . . . . .	50
2.1.3 Équations de bilan . . . . .	52
2.1.4 Processus d'interaction . . . . .	54
2.1.4.a L'évaporation ( $\varphi$ ) . . . . .	54
2.1.4.b L'ionisation multiphotonique (MPI) . . . . .	57
2.1.4.c Le Bremsstrahlung inverse (IB) . . . . .	59
2.1.4.d Le Bremsstrahlung thermique (TB) . . . . .	61
2.1.4.e L'émission spontanée (SE) . . . . .	64
2.1.4.f L'ionisation par impact électronique (EI) . . . . .	67
2.1.4.g L'excitation par impact électronique (EE) . . . . .	69
2.1.4.h Les collisions élastiques (EC) . . . . .	71
2.1.4.i Le stockage d'énergie de translation ( $u_1$ ) . . . . .	72
2.1.4.j Le stockage d'énergie d'excitation et d'ionisation ( $u_2$ ) . . . . .	73
2.1.5 Bilan de l'influence des processus sur la températures et les densités . . . . .	74

2.1.6	Solveur d'équations différentielles ordinaires couplées DVODE . . . . .	76
<b>2.2</b>	<b>Modèle couplé B</b>	<b>79</b>
2.2.1	Cas-test . . . . .	79
2.2.2	Étude des données thermophysiques de l'aluminium . . . . .	80
2.2.2.a	Point critique de l'aluminium . . . . .	80
2.2.2.b	Données thermophysiques sur la gamme 298 - 6700 K . . . . .	82
2.2.3	Équation de bilan en enthalpie . . . . .	85
<b>3</b>	<b>Résultats</b>	<b>89</b>
<b>3.1</b>	<b>Résultats modèle découpé A</b>	<b>91</b>
3.1.1	Conditions du cas-test . . . . .	91
3.1.1.a	Températures . . . . .	91
3.1.1.b	Densités . . . . .	95
3.1.1.c	Graphiques de Boltzmann . . . . .	100
3.1.1.d	Températures d'excitation . . . . .	102
3.1.2	Influence des paramètres d'entrée . . . . .	105
3.1.2.a	Rôle de la densité de flux laser . . . . .	105
3.1.2.b	Rôle de la température de surface . . . . .	111
3.1.3	Influence des données du modèle A . . . . .	116
3.1.3.a	Rôle de la section efficace d'ionisation multiphotonique . . . . .	116
3.1.3.b	Rôle des processus collisionnels et radiatifs . . . . .	119
<b>3.2</b>	<b>Résultats modèle couplé B</b>	<b>127</b>
3.2.1	Couplage cible/plasma . . . . .	127
3.2.2	Interaction laser/surface . . . . .	127
3.2.3	Justification du calcul à haute densité de flux laser . . . . .	131
<b>4</b>	<b>Validation expérimentale</b>	<b>135</b>
<b>4.1</b>	<b>Étude de raies spécifiques observées aux temps courts</b>	<b>141</b>
4.1.1	Raies de $\text{Al}^+$ à 466,3056 et 747,141 nm . . . . .	142
4.1.2	Groupe de raies de $\text{Al}^+$ sur [680 ; 710] nm . . . . .	146
4.1.3	Groupe de raies de $\text{Al}^{2+}$ sur [395 ; 420] nm . . . . .	153
<b>4.2</b>	<b>Étude du fond continu</b>	<b>161</b>
4.2.1	Bremsstrahlung . . . . .	164
4.2.2	Recombinaison radiative . . . . .	165
4.2.3	Continuum Bremsstrahlung et recombinaison radiative . . . . .	167
4.2.4	Superposition de raies élargies par effet Stark . . . . .	171
4.2.5	Comparaison avec les résultats des modèles . . . . .	172
<b>4.3</b>	<b>Diffusion Thomson</b>	<b>175</b>
4.3.1	Dispositif expérimental . . . . .	176
4.3.2	Calcul du spectre de diffusion Thomson . . . . .	176
4.3.2.a	Analyse des satellites . . . . .	181
4.3.2.b	Analyse du pic central de diffusion . . . . .	184

4.3.3	Influence de la diffusion Rayleigh . . . . .	185
4.3.4	Résultats . . . . .	190
	<b>Conclusions et perspectives</b>	<b>194</b>
A	Niveaux d'énergie	201
B	Probabilités d'émission spontanée	209
C	Élargissements Stark	213
D	Données thermodynamiques	221
E	<i>The Critical Temperature of Aluminum</i>	235
F	<i>Modeling of thermal and chemical non-equilibrium in a laser-induced aluminum plasma by means of a Collisional-Radiative model</i>	247
G	<i>Temporal description of aluminum laser-induced plasmas by means of a collisional-radiative model</i>	261
	<b>Bibliographie</b>	<b>284</b>



# Remerciements

Ce mémoire permet de synthétiser mes travaux de thèse débutées en septembre 2007 au laboratoire CORIA. J'espère que par la suite ce mémoire sera un outil de travail convivial pour la communauté scientifique et un ouvrage agréable à lire pour les non-initiés. Tel qu'il a été construit, de nombreux liens sont cachés sous les numéros de figure, de tableau et référence bibliographique. De même pour chaque référence présente dans la bibliographie, le numéro de page où elle intervient est indiqué et un lien est caché sous chaque numéro pour renvoyer le lecteur à la page concernée. Durant ces trois années, la possibilité m'a été offerte de rencontrer et de travailler avec plusieurs personnes que je tiens à remercier. Tout d'abord, je veux exprimer ma gratitude à Stéphane Pellerin et Bruno Bousquet d'avoir accepté d'être rapporteurs de ce mémoire. Je les remercie pour le temps passé à l'étudier et pour m'avoir proposé des corrections à la fois sur le fond et sur la forme. Je vous remercie pour vos commentaires lors de la soutenance et j'espère pouvoir tenir la promesse faite ce jour-là concernant l'aboutissement de la manipulation en diffusion Thomson. Il me semble que vous êtes tout aussi impatient que moi de voir les résultats de cette expérience. Je souhaite également remercier Ioan Schneider d'avoir accepté de présider le jury de thèse et d'avoir apporté tant de choses sur les phénomènes microscopiques mis en jeux dans les plasmas. Merci à Djamel Benredjem d'avoir accepté d'examiner ce travail et d'avoir pris le temps de batailler avec le code HULLAC pour apporter un point de comparaison sur des éléments essentiels du modèle. Mes remerciements vont également à Pascale Monier-Garbet et Daniel L'hermite d'avoir bien voulu participer à ce jury de thèse, de m'avoir proposé quelques corrections à apporter au manuscrit et pour les ouvertures que vous avez proposées à ce travail dans le domaine des plasmas induits par laser ou des plasmas de bords de Tokamak. Enfin, je souhaite remercier Abdelkrim Boukhalfa d'avoir accepté de juger ce travail. Comme vous, je pense que le directeur du laboratoire doit pouvoir assister aux soutenances de thèse et notamment à celles relatives à des domaines de recherche éloignés de celui du directeur. Malheureusement, le temps manque parfois (souvent) et je vous remercie d'autant plus d'avoir pris de votre temps pour assister à cette soutenance.

J'exprime ma reconnaissance à Bruno Chéron pour avoir soutenu ma candidature sur ce sujet de thèse et m'avoir permis de participer à de nombreux congrès. Merci pour vos corrections en anglais. Si la rédaction d'articles me permet de maîtriser cette langue aussi bien que vous, je pourrais me compter parmi les scientifiques ayant un grand nombre de publications. Enfin, je vous remercie pour m'avoir montré le bon fonctionnement du matériel expérimental lors de mes premiers pas dans ce domaine.

Les activités que j'ai eues pendant ces trois années de thèse m'ont permis de rencontrer et travailler avec plusieurs équipes du laboratoire et je tiens à remercier ces équipes pour la sympathie, la rapidité et l'efficacité dont ils ont fait, et font toujours, preuve. Ainsi, je souhaite remercier :

- l'équipe administrative et plus particulièrement Valérie Thieury pour sa disponibilité et ses conseils,

- le service informatique (Guillaume Edouard, Cédric Chambrelan, Olivier Lefebvre et Steve Beauvais) pour avoir supporté mes créations de bugs en tout genre sur les différentes versions de windows,
- le service électronique (Corentin Jouen et Jean Mouard) pour leur aide en salle de manipulation et le générateur de délais,
- le pôle métrologie (Gilles Godard et Carole Gobin) pour le prêt des lasers et autres matériels optiques et
- l'atelier (Benjamin Quevreux, Jacky Galle, Thierry Muller, Bruno Mille, Philippe Toutain, Ludovic Frébourg, Yves Wanner, Manuel Cunha et Cindy Varin) pour toutes les pièces mécaniques destinées à l'expérience.

Pour l'aide qu'ils m'ont apporté en modélisation, je voudrais remercier Thibaut Ménard, Olivier Thomine, Benoit Leveugle et surtout Mathieu Doring pour son aide sur les aspects mathématiques.

J'ai une pensée pour les (futurs) docteurs que j'ai côtoyés pendant ma thèse. Je ne citerais que Caroline Lecaplain, Amélie Cabasse d'une part pour ne pas risquer d'oublier quelqu'un et d'autre part parce qu'elles méritent largement d'être nommées compte tenu de leur sympathie et leur soutien que ce soit au laboratoire ou durant nos lointaines années universitaires.

J'ai bien évidemment une pensée pour mes proches (famille et amis) qui m'ont accompagné et soutenu durant ces années et m'ont permis de sortir la tête du guidon. Je remercie spécialement Fanny Huet pour son aide sur quelques graphiques, posters et présentations et de manière générale pour m'avoir soutenu durant ces trois années et surtout durant la rédaction.

Enfin, je terminerais ces remerciements en ayant une pensée pour l'équipe plasma du laboratoire.

Merci au bureau 1B16 pour m'avoir accueilli et m'avoir laissé le dompter. Merci à Noémie Brémare pour ses noémismes et son aide sur les annexes de ce manuscrit. Merci à Cathy Rond pour m'avoir accompagné durant mes premiers pas en tant que stagiaire puis doctorant et m'avoir aidé pour la rédaction de mon rapport de stage. Merci aussi de m'avoir ligoté les pieds pour que je casse la vitre de la sorbonne dès mon premier jour en salle de manip. Merci à Julien Annaloro pour nos conversations scientifiques ou pas, pour respecter la hiérarchie du bureau et pour son aide en modélisation et sur la rédaction du mémoire. Grâce à toi nous savons que mer à la même orthographe en français et en anglais. Merci à Pascal Boubert pour avoir apprécié mon humour en conférence, pour tenter une nouvelle blague à chaque venue dans le bureau et pour ses remarques pertinentes sur le contenu scientifique de cette thèse. Et bien sûr merci à Arnaud Bultel pour m'avoir accompagné du début à la fin de ce projet. Bien plus qu'un directeur de thèse, Arnaud a su rendre cette thèse aussi intéressante que possible. Même si les objectifs que nous nous sommes fixés étaient ambitieux, Arnaud a mis tout ce qu'il pouvait en œuvre pour aller le plus loin possible dans notre démarche scientifique. Il serait bien prétentieux de ma part de ne pas lui attribuer une grande partie de ce travail. Merci donc pour ces trois années.

A Fanny



# Introduction



L'invention du laser au début des années 1960 a ouvert une ère nouvelle dans le domaine de la physique des plasmas. Très vite, ces sources intenses de rayonnement se sont avérées très intéressantes pour la production de milieux ionisés ainsi que pour leur diagnostic. En parallèle des études portant sur la fluorescence induite par laser ou les diffusions Rayleigh, Raman ou Thomson permettant de diagnostiquer des plasmas produits par exemple par des sources électriques classiques, d'autres travaux ont été développés concernant la production directe de plasmas par laser. En 1962, Brech et Cross [25] produisent le premier plasma induit par laser et en 1963 les Françaises Debras-Guédon et Liodec [53] sont les premières à produire des plasmas par interaction entre des surfaces métalliques et des impulsions laser. L'idée à la base des expériences de Debras-Guédon et Liodec est de profiter du spectre émis par le plasma produit pour déduire la nature des atomes constituant la surface. La technique appelée aujourd'hui LIBS (Laser Induced Breakdown Spectroscopy) était née.

Depuis ce temps des pionniers, beaucoup d'études ont été réalisées. Elles ont permis à la fin des années 1990 le transfert vers l'industrie de la technique de diagnostic : sa maîtrise apparaît à tel point suffisante qu'il existe désormais des appareils miniaturisés permettant de diagnostiquer des échantillons de natures très variées dans des conditions parfois extrêmes. Mentionnons en particulier l'embarquement à bord de la mission MSL (Mars Science Laboratory<sup>1</sup>) d'un module d'analyse de roches par LIBS nommé ChemCam<sup>2</sup> à destination de la planète Mars.

Cette apparente maîtrise ne doit cependant pas cacher un certain nombre de questions fondamentales qui demeurent encore ouvertes près de 50 ans après les travaux fondateurs de Debras-Guédon et Liodec. Parmi les plus importantes, on doit citer celle qui est au cœur de toute étude d'un milieu ionisé : le milieu étudié est-il à l'équilibre thermodynamique local ? La technique d'analyse d'échantillons nommée CF-LIBS (pour *Calibration Free Laser Induced Breakdown Spectroscopy*) repose en effet sur l'hypothèse que le milieu ionisé produit par l'impulsion laser est caractérisé par un certain nombre d'équilibres partiels. Selon le type d'impulsion laser utilisé et selon l'échantillon étudié, ces équilibres ne sont pas nécessairement réalisés. L'analyse peut donc se trouver biaisée.

La situation initiale où l'impulsion laser interagit avec la surface de l'échantillon correspond à un très fort déséquilibre thermodynamique. L'évolution ultérieure du plasma résulte de phénomènes collisionnels, de transport et radiatifs et présente donc la caractéristique d'être irréversible. L'état initial du milieu produit joue ainsi un rôle crucial sur sa relaxation. La réponse à la question de l'équilibre thermodynamique local passe donc nécessairement par une caractérisation précise de la situation initiale et du chemin emprunté par le milieu pour atteindre l'état final. Les travaux de thèse présentés dans ce mémoire ont eu pour but de répondre à cette question dans le cadre d'une situation dépassant la technique d'analyse d'échantillons solides par LIBS mentionnée plus haut. Ils se situent

---

1. Cette mission spatiale internationale est organisée par le Jet Propulsion Laboratory de CalTech (<http://marsprogram.jpl.nasa.gov/msl/mission/overview/>). Une sonde embarquant trois types de caméras, quatre types de spectromètres (dont ChemCam), deux détecteurs de rayonnement, un senseur environnemental et un senseur atmosphérique sera envoyée vers Mars fin 2011. Début 2012, la sonde s'y posera et commencera l'analyse approfondie des sols et des roches recouvrant la surface de la planète sur une distance de plusieurs kilomètres autour du lieu d'atterrissement. Le but de la mission est de caractériser cette surface du point de vue formation, structure et composition chimique afin de comprendre la géologie du lieu et son histoire. Une attention particulière sera portée à la détection de composés carbonés prébiotiques susceptibles de s'être formés sur Mars dans des conditions similaires à celles de la Terre et d'expliquer pourquoi aucune trace de vie n'a jusqu'à présent été détectée sur cette planète.

2. ChemCam est développé à Toulouse par le Centre d'Etudes Spatiales des Rayonnements (CESR, UMR CNRS 5187 : <http://www.cesr.fr/>).

par conséquent dans une perspective beaucoup plus large que le strict cadre de cette technique et ont pour but de contribuer à une meilleure compréhension de l'interaction laser-matière et de la cinétique des plasmas produits lors de cette interaction.

Après une présentation des plasmas produits par interaction laser-matière, ce mémoire décrit dans la première partie l'état actuel des connaissances portant sur les premiers instants du plasma en insistant sur le manque de données expérimentales disponibles et surtout sur les modèles ayant tenté de le décrire. Cette revue permet de comprendre les orientations données aux travaux, à savoir la double approche théorique et expérimentale.

Pour ce qui concerne l'approche théorique, deux modèles numériques ont été mis au point et sont présentés dans la partie 2. Lors de l'interaction laser-matière sous fluence modérée, l'échantillon s'échauffe, se liquéfie puis s'évapore. La modélisation complète de la dynamique du plasma nécessite par conséquent le couplage entre la phase gazeuse et la phase solide se liquéfiant. Le traitement de ce couplage présente des difficultés. Dans un premier temps, un couplage artificiel a été considéré : il consiste à ne pas résoudre les équations de bilan dans l'échantillon et à donner une forme arbitraire justifiée ultérieurement mais cependant réaliste aux échanges avec la phase gazeuse. Le modèle en rapport est nommé "modèle A". Dans un second temps, le couplage est effectivement pris en compte et les équations de bilan internes à l'échantillon sont résolues. Ce modèle est nommé "modèle B". Dans les deux cas, la modélisation du plasma lui-même repose sur des hypothèses d'équilibre réduites permettant d'estimer en particulier les conditions d'obtention des équilibres d'excitation. L'approche retenue consiste à considérer les états excités de manière indépendante et à prendre en compte les mécanismes élémentaires collisionnels et radiatifs que subissent les particules dans ces états : cette approche "collisionnelle-radiative" couplée indirectement ou directement à l'interface constitue respectivement les modèles A et B. Les résultats de ces modèles sont analysés dans la partie 3.

Ces modèles décrivent la production du plasma ainsi que sa relaxation ultérieure. Ils permettent en particulier d'estimer la densité et la température électroniques maximales atteintes pendant la phase de création. La validation de ces modèles passe au moins par la confrontation des résultats obtenus concernant ces propriétés électroniques à ceux obtenus expérimentalement. Un dispositif expérimental original a donc été mis au point et des mesures pour déterminer les propriétés électroniques ainsi que leurs évolutions temporelles ont été réalisées. Ces données ont été obtenues par analyse du fond continu et de raies, l'ensemble étant émis très tôt par le plasma. D'autre part, des essais de détermination directe par diffusion Thomson ont été menés : bien que ces essais aient été jusque-là infructueux, nous présentons malgré tout le dispositif et les calculs préliminaires en appui des futures campagnes de mesure. La partie 4 décrit l'ensemble du dispositif expérimental, les techniques de mesure utilisées ainsi que les résultats obtenus.

Pour terminer, la partie 5 résume l'ensemble des travaux réalisés. Les résultats mis en évidence suscitent de nouvelles questions : pour y répondre, les perspectives de ce travail sont exposées.





# Première partie

## Plasmas induits par laser



## Chapitre 1.1

# Généralités sur les plasmas induits par laser

Traditionnellement les différents états de la matière sont classés selon le niveau d'enthalpie massique à laquelle elle est portée. L'état solide et l'état liquide se caractérisent par une masse volumique en général assez forte (plusieurs milliers de  $\text{kg m}^{-3}$ ) faiblement fonction des niveaux de pression et de température auxquels l'échantillon considéré est porté. Une augmentation de l'enthalpie massique permet la transition à l'état gazeux où pression et température sont les paramètres principaux jouant sur la masse volumique de la substance. Le gaz produit est diélectrique : sa résistivité électrique est donc extrêmement forte.

La transition entre deux des trois états précédents présente la caractéristique de se produire à pression et température constante. Il existe plusieurs couple ( $P ; T$ ) permettant au changement de phase d'avoir lieu. A ces trois états solide, liquide et gazeux, les physiciens des plasmas en ajoutent un quatrième. Ce nouvel état n'en est pas vraiment un dans la mesure où la transition à partir d'un de ces trois états ne possède pas la caractéristique de se produire à température ou pression constante lorsque l'autre grandeur intensive est maintenue constante [27]. Cet "état" est appelé plasma. Il est caractérisé par l'existence d'électrons libres et d'ions qui rendent la substance considérée conductrice de l'électricité. Les différences fondamentales entre les transitions liquide  $\rightarrow$  gaz et gaz  $\rightarrow$  plasma peuvent être facilement mises en évidence si l'on considère une élévation progressive de l'enthalpie massique à pression constante. La température d'une substance sous forme liquide cesse d'augmenter lorsqu'elle atteint celle correspondant à la température de saturation à la pression considérée : alors que l'enthalpie massique continue d'augmenter, la température demeure constante tant que l'intégralité du liquide n'a pas été vaporisée. Le comportement d'un gaz maintenu à pression constante et dont l'enthalpie massique augmente est en revanche très différent : progressivement, les électrons apparaissent alors que la température augmente sans qu'aucun pallier ne soit observé. La transition gaz  $\rightarrow$  plasma est continue du point de vue de la dérivée première de la température.

Bien qu'il ne s'agisse pas d'un état à proprement parler qui se distingue clairement de l'état gazeux, les plasmas sont considérés par la majorité des physiciens comme un état à part entière. La coexistence d'ions et d'électrons libres au sein du plasma lui confère des propriétés originales. L'une des principales est de permettre le transport de la quantité de mouvement. Ce transport résulte des forces électrostatiques existant entre ces particules et dont le rayon d'action est étendu. La corrélation qui en résulte ressemble à celle assurée dans le sang par le plasma sanguin. C'est en l'honneur de cette propriété particulière que

les gaz ionisés ont été baptisés "plasmas" par Irving Langmuir au début du XX<sup>e</sup> siècle [168, 241].

Une première manière de produire un plasma a été mentionnée plus haut : augmenter l'enthalpie massique d'un gaz permet d'observer la progressive apparition des ions et des électrons. Bien sûr, cette méthode n'est pas simple à mettre en œuvre compte tenu des hauts niveaux de température bien souvent requis et ceci explique pourquoi, historiquement, elle n'a pas été la première. La première observation d'un plasma en laboratoire date du début du XIX<sup>e</sup> siècle et est traditionnellement attribuée à Sir Humphry Davy (1778-1829), même si des contemporains avaient déjà observé ce type de milieu en faisant passer des courants variables dans des gaz. C'est le cas notamment de Vasilij Petrov (1761-1834) à Saint-Petersbourg en 1802 [158]. Davy réussit à faire passer de manière stable et contrôlée un courant électrique continu dans un gaz initialement non conducteur en utilisant des électrodes en carbone : l'arc au carbone est ainsi mis en évidence. Pendant longtemps, les sources électriques vont être seules disponibles pour produire des plasmas.

Un moyen alternatif de produire un plasma est découvert vers la fin du XIX<sup>e</sup> siècle par Ernst Mach (1838-1916) en faisant se déplacer dans un gaz un objet à une vitesse suffisamment élevée (qualifiée aujourd'hui de supersonique). Peu de temps après, en 1899 le premier tube à choc est conçu puis construit par le Français Paul Vieille (1854-1934) au laboratoire central des poudres et salpêtres de Paris [156]. L'idée à la base des travaux de Vieille est de fortement augmenter la pression (et par conséquent la masse volumique) d'une quantité donnée de gaz puis en un temps très court de relâcher cette masse de gaz à une pression inférieure. Le mouvement du gaz se propageant dans le sens des pressions décroissantes engendre une augmentation importante de la température en aval dont le niveau peut-être suffisamment élevé pour induire une cinétique d'ionisation. Cette situation physique peut paraître peu naturelle : pourtant, elle correspond à celle des entrées atmosphériques d'engins spatiaux [32], de sondes ou bien encore de météorites. L'élévation de température peut-être suffisante pour détruire la surface de l'objet, destruction accompagnée de l'émission d'un rayonnement intense facilement observable du sol. Ces tubes à choc sont toujours utilisés de nos jours pour l'étude des plasmas d'entrée atmosphérique.

Plus récemment, l'invention du laser de laboratoire ouvre de nouvelles perspectives. Les premiers lasers impulsifs (à rubis) voient le jour au tout début des années 1960 et dès les premiers essais, on constate qu'il est possible d'augmenter leur puissance assez aisément et qu'à la suite d'une telle augmentation des phénomènes particuliers peuvent être observés [25]. Le faisceau simplement dirigé dans un gaz peut conduire à la formation d'"étincelles", de décharges (anticipant l'utilisation du mot "breakdown") dont les mécanismes de formation ont fait l'objet de controverses pendant un certain temps. Alors que l'énergie caractéristique des photons impliqués est de l'ordre de l'électron-volt (donc largement inférieure au potentiel d'ionisation des atomes ou molécules du gaz considéré) il était difficile de comprendre comment la transition d'un milieu diélectrique à un excellent conducteur pouvait avoir lieu et donc, comment pouvaient être produits des ions et des électrons libres [87]. Le processus permettant cette transition est l'ionisation multiphotonique sur lequel nous reviendrons plus loin.

Dans le même temps, l'interaction entre une impulsion laser et un matériau solide commence à être étudiée. Les travaux des Françaises Jeannine Debras-Guédon et Nicole Liodec cités en introduction de ce mémoire de thèse, peuvent être considérés comme précurseurs des études qui seront menées ultérieurement [53]. Ce sont en effet les premières à étudier l'interaction laser-surface solide en vue de l'analyse qualitative de cette surface. On peut en effet trouver en préambule de l'article des CRAS (Compte Rendu de l'Académie

des Sciences), où les premiers résultats d'expériences sont consignés, la phrase :

*"Le fait que le laser permet d'obtenir des densités énergétiques locales très élevées peut laisser espérer en utilisant cette énergie pour l'excitation de spectres d'émission une application intéressante dans le domaine de l'analyse ponctuelle qui, jusqu'alors, relève surtout de la sonde électronique avec par ailleurs certaines limitations."*

La technique en rapport sera baptisée LIBS pour Laser Induced Breakdown Spectroscopy. Cette même année 1963, d'autres expériences d'interaction laser-matière sont réalisées (sur C par Ready [193], sur Cu, Mo, Ta, W, des aciers et des semi-conducteurs, sur Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> par Honig et Woolston [107]) mais à notre connaissance aucune n'envisage sérieusement une application sous forme de technique d'analyse de surface. On peut ainsi affirmer que 1963 constitue en quelque sorte l'année de naissance de la technique LIBS. On utilise désormais cette technique pour le contrôle qualité des aciers [176], la caractérisation des aérosols [190] ou encore les missions planétaires comme mentionné en introduction.

Depuis cette date, de très nombreuses études ont été réalisées. Il est hors de propos d'en relater l'histoire ici, mais mentionnons simplement qu'après un engouement important observé à la transition des années 1960-1970, l'interaction laser-matière en vue d'analyse d'échantillons est passée par plusieurs phases d'intérêt croissant puis décroissant [200]. Ce n'est qu'au début des années 1990 qu'à nouveau l'intérêt des chercheurs s'est porté vers elle. Ce regain coïncide avec la généralisation de l'utilisation des laser nanosecondes et leur miniaturisation. Cremers et Radziemski donnent sur la période 1991-2001 l'évolution du nombre d'articles recensés dans la littérature portant sur la LIBS [164]. De quelques articles en 1991, on observe une très forte augmentation à près d'une centaine en 2001. La communauté semble désormais fortement constituée à tel point que se succèdent tous les ans depuis 2000 les conférences bisannuelles LIBS et EMSLIBS.

Un grand nombre de travaux présentés dans ces colloques concernent la méthode d'analyse et ses possibilités. Pour la mettre au point, des mesures résolues en temps et en espace ont été réalisées : les paragraphes qui suivent se proposent de faire une synthèse rapide des résultats obtenus. Ces travaux traitent de l'utilisation de laser nanosecondes : dans un premier temps, les plasmas induits par ce type de laser sont présentés. En second lieu, ceux produits par des impulsions femtosecondes sont abordés. Cette revue des propriétés des plasmas induits par laser nanoseconde est l'occasion d'insister sur un certain nombre de caractéristiques sur lesquelles seront basés les modèles décrits dans la partie 2 : nous avons mis sous forme de remarques numérotées et encadrées ces caractéristiques.



# Chapitre 1.2

## Dynamique d'un plasma induit par laser nanoseconde

### 1.2.1 Seuils en fluence

L'interaction laser-matière peut être mise expérimentalement en œuvre en choisissant :

- la nature et l'état de surface du matériau,
- la longueur d'onde  $\lambda_{las}$  du rayonnement laser utilisé,
- la durée  $\tau$  de l'impulsion (mesurée à mi-hauteur),
- l'énergie  $E$  de l'impulsion,
- la répartition spatiale de l'énergie,
- la nature et
- la pression du gaz placé devant l'échantillon.

Dans la suite, l'étude portera majoritairement sur des situations où l'angle d'incidence est nul. Si tel n'est pas le cas, les conditions d'éclairage de la surface sont modifiés sans que la physique de l'interaction laser-matière soit fondamentalement différente.

Les sept paramètres précédents suffisent pour qualifier complètement une situation. Certains d'entre eux sont liés. On utilise souvent le concept de fluence qui est l'énergie déposée par unité de surface pendant la durée totale de l'impulsion. En supposant le faisceau gaussien et le waist après focalisation placé à proximité de la surface de l'échantillon ( $z = 0$ ), la densité de flux de l'impulsion laser vaut au niveau de la surface :

$$\varphi_{las}(r, z = 0, t) = \varphi_{las}^{\max} \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right) \exp\left[-4 \ln 2 \left(\frac{t}{\tau}\right)^2\right] \quad (1.2.1)$$

où  $\omega_0$  est le rayon du faisceau laser à  $1/e^2$ .

L'intégration dans le temps de cette densité de flux conduit à l'énergie déposée par unité de surface. C'est la fluence locale qui vaut :

$$F(r, 0) = \int_{-\infty}^{+\infty} \varphi_{las}(r, 0, t) dt = \varphi_{las}^{\max} \frac{\tau}{2} \sqrt{\frac{\pi}{\ln 2}} \exp\left(-\frac{2r^2}{\omega_0^2}\right) \quad (1.2.2)$$

dont la valeur maximale est obtenue au centre :

$$F^{\max} = F(0, 0) = \varphi_{las}^{\max} \frac{\tau}{2} \sqrt{\frac{\pi}{\ln 2}} \approx \varphi_{las}^{\max} \tau \quad (1.2.3)$$

Bien que le faisceau ait une extension spatiale infinie, on peut néanmoins définir une fluence moyenne sur la largeur à  $1/e^2$  du faisceau par :

$$F = \frac{1}{\pi \omega_0^2} \int_0^{+\infty} 2\pi r F(r, 0) dr = \frac{F^{max}}{2} \quad (1.2.4)$$

Sachant de plus que l'énergie de l'impulsion vaut :

$$E = \int_0^{+\infty} 2\pi r F(r, 0) dr \quad (1.2.5)$$

on en déduit la fluence moyenne sous la forme :

$$F = \frac{E}{\pi \omega_0^2} \quad (1.2.6)$$

Cette grandeur, qui sera simplement nommée fluence dans la suite, permet de comparer aisément plusieurs situations. De plus, elle est plus facile à estimer que la densité de flux d'énergie, l'énergie d'une impulsion étant donnée directement dans la documentation technique de la source laser et garantie par son constructeur. La fluence a le second avantage de permettre une classification aisée des phénomènes.

Il faut atteindre une fluence modérée de l'ordre de quelques  $\text{J cm}^{-2}$  pour observer la formation d'un plasma à proximité de la surface de l'échantillon. Bien sûr, d'un type de surface à l'autre, les comportements sont différents ; néanmoins, cette limite semble être à peu près respectée quel que soit le matériau. Par exemple pour le titane, le molybdène et le nickel, Petzoldt *et al.* [184] reportent un seuil de  $2 \text{ J cm}^{-2}$  pour  $\lambda_{las} = 532 \text{ nm}$  et  $\tau = 5,5 \text{ ns}$  (bien corrélée à la valeur obtenue par Thomann *et al.* pour le titane [225]). Ils observent une fluence seuil plus grande pour le cuivre ( $3 \text{ J cm}^{-2}$ ). Des résultats sont également donnés pour le tungstène, l'or et surtout l'aluminium, le matériau-test qui va nous intéresser tout au long de cette étude. La valeur correspondante de la fluence seuil n'est pas reportée ici en raison des fortes incertitudes des expériences menées par Petzoldt *et al.* Pour l'aluminium, Cabalin et Laserna reportent une fluence seuil<sup>1</sup> de  $1,0 \text{ J cm}^{-2}$  à  $\lambda_{las} = 1064 \text{ nm}$  et de  $1,3 \text{ J cm}^{-2}$  à  $\lambda_{las} = 532 \text{ nm}$  pour  $\tau = 5 \text{ ns}$  [34]. D'autre part, Fishburn *et al.* obtiennent une valeur seuil de  $1,5 \text{ J cm}^{-2}$  à  $544 \text{ nm}$  pour une durée d'impulsion de  $30 \text{ ns}$  [71]. Mazhukin *et al.* reportent une valeur seuil d'environ  $1 \text{ J cm}^{-2}$  à  $248 \text{ nm}$  pour une durée d'impulsion similaire [154]. Concernant le carbone sous forme graphite, les fluences seuils permettant d'observer la formation d'un plasma sont d'un ordre de grandeur supérieur. Par exemple, Chen et Mazumder reportent un seuil d'environ  $10 \text{ J cm}^{-2}$  à  $248 \text{ nm}$  [40]. Bien qu'ils ne donnent pas de valeur précise, Hermann *et al.* semblent obtenir une valeur seuil inférieure [102]. Ces auteurs mentionnent qu'avec une fluence de  $8 \text{ J cm}^{-2}$  aucune raie ionique du carbone ne peut être identifiée, alors que le plasma est observé : le seuil en fluence doit donc être très voisin de cette valeur. Notons au passage que la valeur supérieure de la fluence nécessaire à l'observation des mêmes phénomènes que pour les éléments métalliques conduit les auteurs à la conclusion que l'ionisation multiphotonique et l'ionisation par impact électronique à partir des états excités jouent un rôle très important dans la production du plasma, le potentiel d'ionisation du carbone (11,26 eV) étant largement supérieur à celui des éléments métalliques en question. Nous ne manquerons pas de revenir sur cette remarque dans la suite. Les valeurs de fluence seuil pour l'observation de raies ioniques dans le cas de tirs laser sur des échantillons de C, Si, Cu et Al obtenues par Claeysens *et al.* sont d'autre part très bien corrélées aux valeurs précédentes [44].

---

1. Fluence minimale permettant de détecter l'émission de signaux lumineux par les éléments ablatés

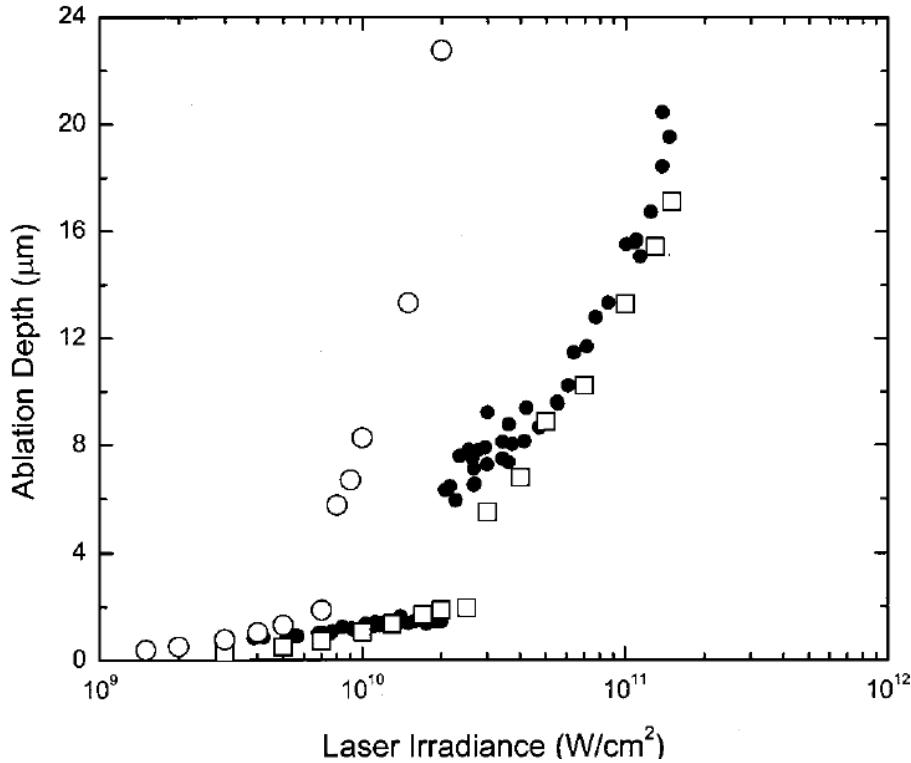


FIGURE 1.2.1 – Évolution de la profondeur d’ablation d’un échantillon de silicium en fonction de la densité de flux laser ( $\lambda_{las} = 266 \text{ nm}$ ,  $\tau = 3 \text{ ns}$ , Lu *et al.* [146]). Les ronds noirs correspondent aux mesures, les cercles et carrés blancs aux résultats d’une simulation basée sur des hypothèses différentes.

A plus forte fluence apparaît un nouveau seuil. Il correspond à une très nette augmentation de la quantité de matière extraite de l’échantillon et formant le plasma. A titre d’illustration est reproduite en figure 1.2.1 l’évolution de la profondeur d’ablation d’un échantillon de silicium en fonction de la densité de flux laser à  $\lambda = 266 \text{ nm}$  et  $\tau = 3 \text{ ns}$  obtenue par Lu *et al.* [146]. On constate clairement un changement de régime pour une densité de flux autour de  $2 \cdot 10^{10} \text{ W cm}^{-2}$  (en excellent accord avec les résultats expérimentaux de Liu *et al.* [141]) : en deçà de cette valeur, le passage des atomes de la surface à la phase gazeuse est modéré alors qu’il est nettement plus intense au-delà, ce qui explique l’augmentation très forte de la profondeur de matériau ablaté. Pour l’aluminium, Niedrig et Bostanjoglo reportent un seuil de  $5 \text{ à } 6 \text{ J cm}^{-2}$  avec  $\lambda_{las} = 532 \text{ nm}$  et  $\tau \approx 10 \text{ ns}$  [174]. Pour une durée d’impulsion inférieure ( $\tau = 5 \text{ ns}$ ), Porneala et Willis mesurent précisément une valeur seuil de  $5,2 \text{ J cm}^{-2}$  à la même longueur d’onde [187]. La figure 1.2.2 montre l’évolution de la profondeur d’ablation en fonction de la fluence où l’on distingue très nettement le changement de régime au seuil de  $5 \text{ J cm}^{-2}$ .

Les travaux de Fishburn *et al.* déjà cités rendent compte d’un seuil de  $7 \text{ J cm}^{-2}$  à 544 nm pour une durée d’impulsion de 30 ns dans le cas de l’aluminium.

Pour le fer, cette limite est inférieure. A titre d’illustration, la figure 1.2.3 montre une image obtenue par microscopie électronique à balayage de la surface d’un échantillon d’acier soumis à une impulsion laser nanoseconde de longueur d’onde 780 nm selon une fluence de  $4 \text{ J cm}^{-2}$  [42]. On constate que le matériau a été éjecté et que sur les bords du cratère des gouttes semblent s’être formées.

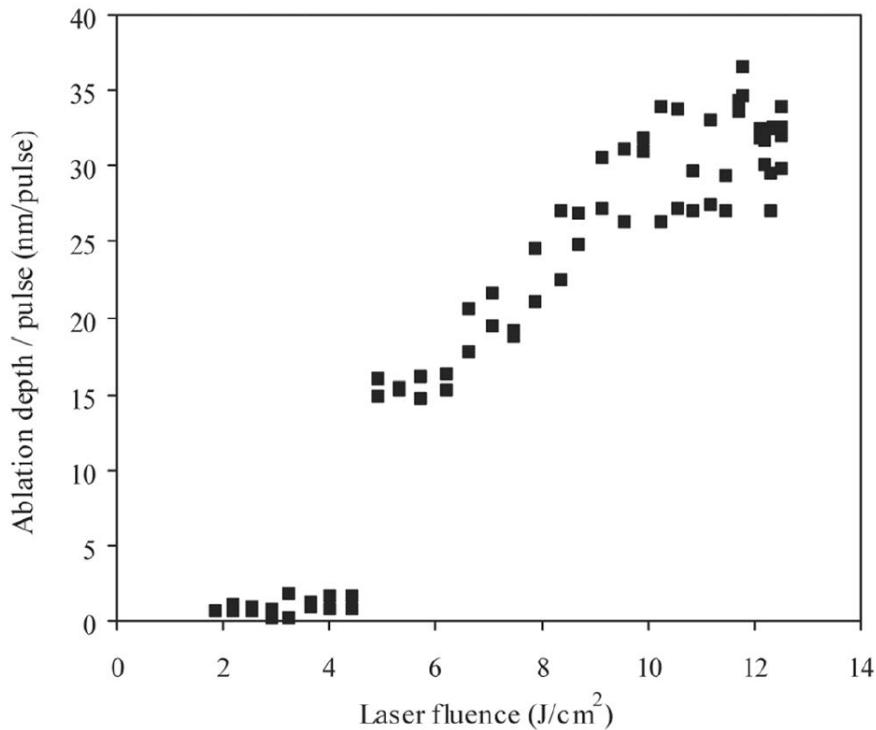


FIGURE 1.2.2 – Évolution de la profondeur d'ablation d'un échantillon d'aluminium en fonction de la fluence ( $\lambda_{las} = 532 \text{ nm}$ ,  $\tau = 5 \text{ ns}$ , Porneala et Willis [187]).

Ce nouveau régime, dont nous venons de caractériser les seuils d'observation en fluence en fonction des conditions de durée d'impulsion et de longueur d'onde, correspond à ce qui est communément appelé "phase d'explosion" ou "explosion de phase" (on trouve dans la littérature les deux expressions sans qu'aucune ne l'emporte sur l'autre). Ce régime particulier correspond à l'ébullition explosive du matériau [162] et peut être accompagnée de l'émission d'électrons énergétiques [112]. Pour expliquer cette soudaine augmentation des profondeurs d'ablation, une théorie appelée "chauffage subsurface" a été élaborée au début des années 1990 [214] à partir de travaux antérieurs. Il est intéressant d'analyser de près cette théorie : nous n'en donnons ici que les grandes lignes car cela permet de justifier la discussion des propriétés thermophysiques de l'aluminium de la section 2.2.2. Cette théorie est basée sur les hypothèses suivantes :

- en dépit des changements de phase ayant lieu au sein du matériau, les équations de bilan de l'énergie faisant intervenir la température et non l'enthalpie massique sont supposées s'appliquer,
- la température à la surface est contre toute logique maintenue égale à la température d'ébullition alors que la pression du gaz à la surface augmente du fait de l'évaporation,
- la profondeur de pénétration de l'impulsion laser vaut  $\delta \approx 100 \text{ nm}^2$ ,
- aucune hypothèse ne semble être faite sur l'évolution de l'enthalpie de vaporisation du matériau considéré au-dessus du point d'ébullition.

Cette théorie permet de déduire en  $z = \delta$  des températures supérieures à la température de surface (la différence peut atteindre 2000 K dans le cas du silicium, 4000 K

2. Dans des conditions proches des nôtre, la profondeur de pénétration est voisine de 10 nm [180].

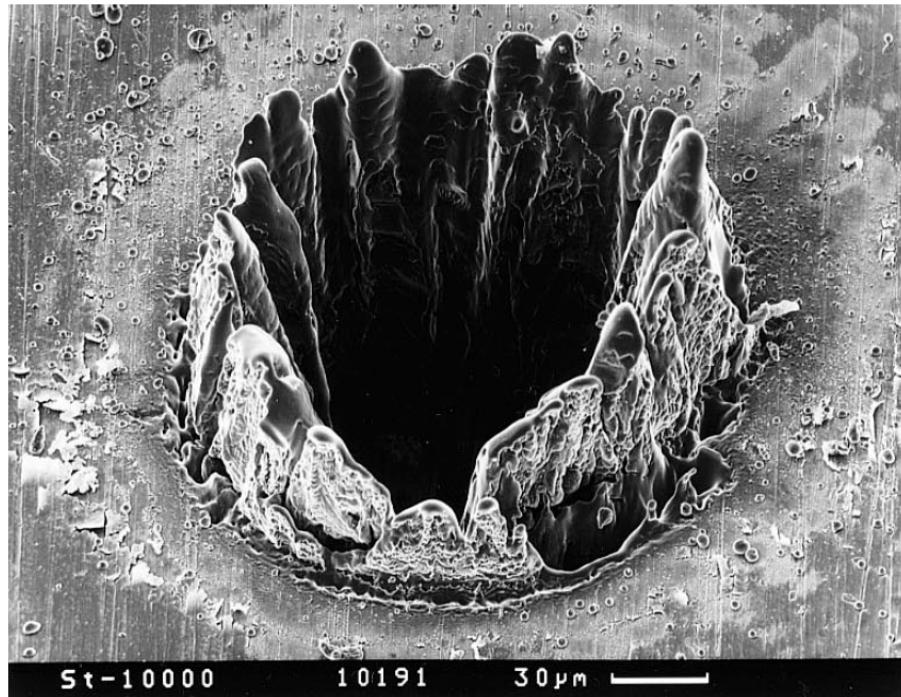


FIGURE 1.2.3 – Image obtenue par microscopie électronique à balayage de la surface d'un échantillon d'acier au delà du second seuil en fluence ( $\lambda_{las} = 780$  nm,  $\tau = 3$  ns, Chichkov *et al.* [42]).

dans celui du graphite et de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  [31] et le rapport entre ces deux températures peut atteindre la valeur 2,5 dans certains cas [75]) : le matériau peut alors se séparer en couches d'où le terme "ablation".

Assez rapidement, l'existence d'un tel chauffage subsurface a été remise en cause [121, 122]. La température n'a aucune raison de rester constante dans la mesure où la pression au-dessus de la surface augmente suite au changement de phase et aux temps caractéristiques trop courts pour permettre une évacuation suffisamment rapide de la matière ainsi apportée : cette température augmente et atteint très vite la température critique du matériau. Le changement de phase au sens traditionnel du terme cesse alors de rendre compte de la situation, l'enthalpie de vaporisation devenant nulle au point critique. Les mécanismes intervenant au delà de cette limite ne sont pas encore clairement identifiés. Certains articles invoquent la formation de bulles au sein du liquide qui se retrouve surchauffé [147] : vu les températures très élevées et la très faible valeur de la tension superficielle (théoriquement nulle puisque la température est proche de la température critique), le rayon de ses bulles augmente très rapidement, donnant au changement de phase ce caractère "explosif". Certains résultats expérimentaux suggèrent que la couche de liquide surchauffé doit être suffisamment épaisse pour que l'explosion puisse être observée [194]. La densité de la matière chute suffisamment pour qu'elle prenne de la vitesse : quittant la zone, elle perd de l'énergie, ce qui entraîne sa "recondensation" sous forme de gouttelettes dont différentes équipes de recherche ont déjà mis en évidence la formation [46, 187, 250, 251]. A titre d'illustration, on peut constater cette formation dans les images enregistrées par Porneala et Willis [187] sur la figure 1.2.4.

Les informations précédentes indiquent que dans des conditions de densité de flux importante, liquide et gaz sont mélangés pour former un milieu diphasique dont les propriétés sous flux laser ont antérieurement été étudiées [3] mais demeurent malgré tout très

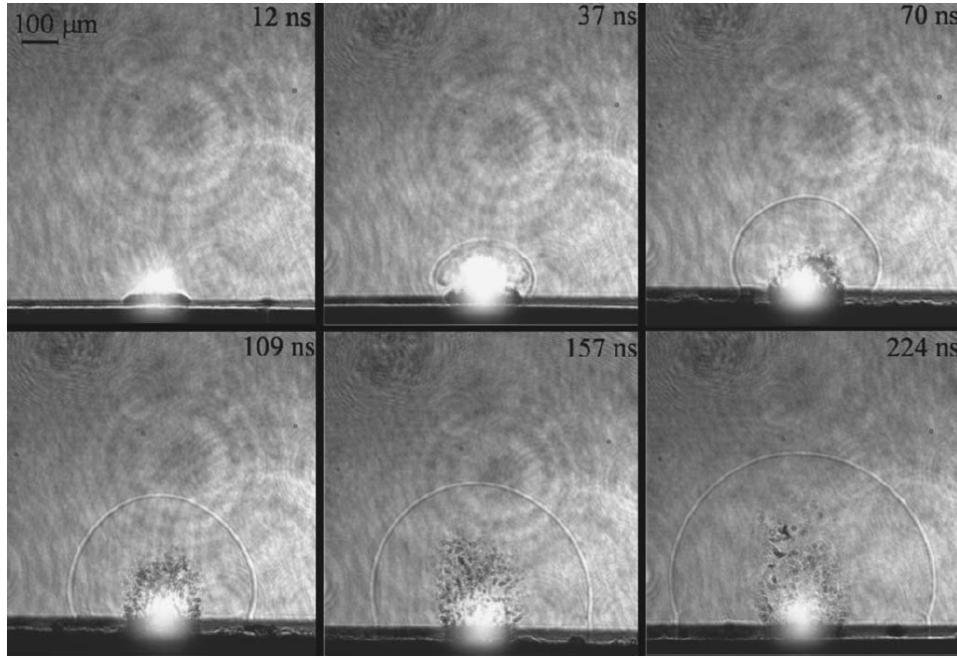


FIGURE 1.2.4 – Images à différents instants du plasma obtenu lors de l'interaction entre une impulsion laser à  $\lambda_{las} = 1064$  nm et de durée  $\tau = 5$  ns et une cible d'aluminium [187]. On peut noter la formation et la propagation d'une onde de choc ainsi que la formation progressive de gouttelettes d'aluminium.

mal connues. La situation est encore plus complexe lorsque des céramiques sont utilisées comme échantillon en raison de leur structure en grains liés par des joints [132]. Pour des impulsions laser picosecondes, des approches multiphasiques très intéressantes sont développées, notamment par Lorazo *et al.* [144] mais ne semblent pas adaptées au cas des impulsions nanosecondes en raison des échelles de temps caractéristiques très différentes. D'autres approches de dynamique moléculaire sont également développées concernant des solides organiques pour des impulsions laser du même ordre de grandeur : elles permettent en particulier de mettre en évidence les deux seuils de fluence que nous avons commentés jusqu'à présent et qui existent également pour des impulsions courtes [257]. Des approches fluides sont également développées dont les résultats sont globalement validés par l'expérience mais nécessitent néanmoins des travaux complémentaires [145].

Ainsi, deux seuils en fluence existent au passage desquels les mécanismes prépondérants changent de nature. En dessous d'un premier seuil, l'interaction est de faible intensité : le matériau s'échauffe sans qu'aucune vaporisation notable ne se produise. Au-dessus de ce premier seuil, l'échauffement est suffisant pour que la vaporisation soit importante. L'interaction entre cette vapeur et l'impulsion laser conduit ensuite à la formation d'un plasma. Le second seuil apparaît à plus forte fluence, lorsque le matériau atteint son point critique : un milieu multiphasique est alors produit. Pour abréger, nous noterons respectivement  $F_0$  et  $F_1$  ces seuils en fluence dans la suite.

**Remarque 1.** Le matériau interagissant avec une impulsion laser nanoseconde est soumis à échauffement, liquéfaction puis évaporation si la fluence est comprise entre  $F_0$  et  $F_1$ . Pour l'aluminium, on a  $F_0 \approx 1 \text{ J cm}^{-2}$  et  $F_1 \approx 6 \text{ J cm}^{-2}$

La grande majorité des travaux de modélisation ne distinguent pas ces deux situations pourtant fondamentalement différentes [7, 8, 36, 37, 38, 157, 247]. Pour modéliser le déséquilibre thermochimique, il est nécessaire de se placer dans le cadre d'une situation simple du point de vue mécanique des fluides, en particulier où une seule phase intervient : en effet, à notre connaissance, aucun modèle incorporant une cinétique détaillée n'a été élaboré pour des écoulements multiphasiques jusqu'à ce jour. C'est la raison pour laquelle les modèles présentés dans la partie 2 sont élaborés pour une fluence  $F$  comprise entre  $F_0$  et  $F_1$  : leurs résultats ne pourront être comparés à l'expérience que sur cet intervalle.

Enfin, bien que la fluence soit un paramètre couramment utilisé pour caractériser le régime de fonctionnement du plasma, certaines études comme celles de Lagrange [135] ou de Shannon *et al.* [211] mettent en évidence que ce paramètre n'est pas suffisant pour caractériser l'interaction laser/matière. En effet, les auteurs montrent que le plasma se comporte de manière différente en diminuant uniquement la surface éclairée ou en augmentant l'énergie de l'impulsion laser si l'on souhaite augmenter la fluence. Dès lors, il est insuffisant de se baser sur le simple critère de la fluence pour comparer différentes études.

## 1.2.2 Interaction entre le plasma formé et le gaz ambiant

La figure 1.2.4 montrée précédemment pour illustrer la formation de gouttes lorsque  $F > F_1$  résulte d'expériences menées à la pression atmosphérique. On constate aisément la formation d'une onde de choc dont la vitesse peut être estimée à  $3 \text{ km s}^{-1}$ . On peut également observer la formation d'ondes de choc pour des fluences inférieures à  $F_1$ , de sorte qu'il n'existe pas de seuil en fluence pour leur formation.

Le niveau de pression ambiant est en réalité le facteur limitant. Harilal *et al.* en font une étude approfondie dans le cadre de l'aluminium [94]. En dessous d'une pression seuil égale environ à 10 Pa, le plasma produit se développe comme s'il était dans le vide (cf. figure 1.2.5).

La zone émettant le plus de rayonnement est située à l'immédiat voisinage de la surface de l'échantillon, dans une zone appelée "couche de Knudsen". Cette zone émet du rayonnement bien après que le tir laser a cessé (jusqu'à 1  $\mu\text{s}$  pour des tirs de 5 ns). On dénombre peu d'études expérimentales réalisées à très faible pression donc consacrées à l'étude de cette couche de Knudsen. Cependant, elle a fait l'objet du développement de plusieurs modèles théoriques. Selon Finke et Simon [68], la couche de Knudsen est définie comme la zone assurant la continuité entre la surface de l'échantillon où la fonction de distribution en vitesse des atomes est très fortement déséquilibrée en raison du dépôt de l'énergie laser et l'endroit où l'équilibre est à nouveau observé. Sibold et Urbassek donnent de cette couche une définition plus précise [212]. Ils définissent deux températures  $T_{\parallel}$  et  $T_{\perp}$  relatives aux variances de la fonction de distribution en vitesse dans les sens parallèle et perpendiculaire à l'écoulement en provenance de la surface. La couche de Knudsen est alors la zone d'épaisseur  $l_K$  nécessaire pour que ces températures deviennent égales (à une différence statistique près de l'ordre de 2 %). L'approche retenue par ces groupes d'auteurs repose sur la résolution de l'équation de Boltzmann, la fonction de distribution en vitesse n'étant pas maxwellienne dans la couche de Knudsen. En utilisant l'approximation du temps de relaxation (Bhatnagar, Gross & Krook [20]) ou une approche Monte Carlo, la distance  $l_K$  nécessaire pour retrouver l'équilibre est estimée à quelques libres parcours

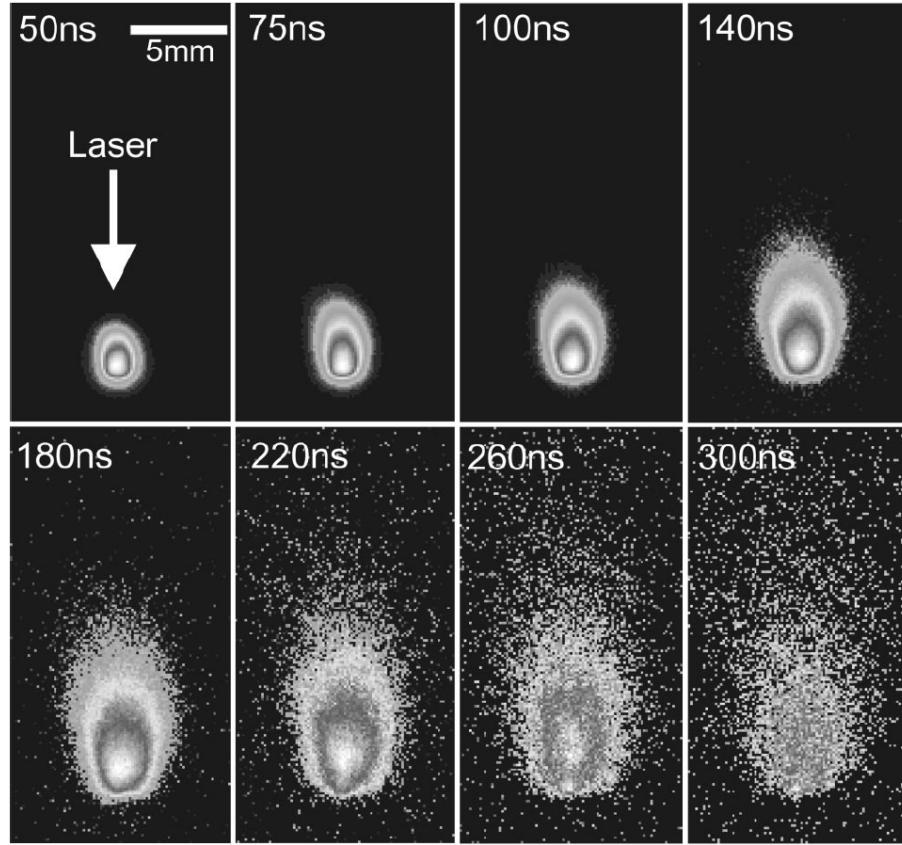


FIGURE 1.2.5 – Images à différents instants du plasma obtenu lors de l’interaction entre une impulsion laser à  $\lambda_{las} = 532$  nm et de durée  $\tau = 8$  ns et une cible d’aluminium [94] où la pression du gaz ambiant est de  $10^{-4}$  Pa. On peut observer très près de la surface le rayonnement émis par la couche de Knudsen.

moyens par Finke et Simon et à 20 libres parcours moyens selon Sibold et Urbassek. Ces derniers ont d'autre part estimé le temps nécessaire à la couche pour atteindre un état stationnaire lorsque la densité de flux d'évaporation est constante et la matière évaporée évacuée. Ils obtiennent une durée de l'ordre de :

$$\tau_K = 400 \frac{l_K}{\bar{v}_S} \quad (1.2.7)$$

en adoptant le critère des 2 %. Dans l'équation (1.2.7),  $\bar{v}_S = \sqrt{\frac{8k_B T_S}{\pi m_A}}$  est la vitesse d'agitation thermique des atomes à la température  $T_S$  de la surface. Si un critère de 10 % est adopté pour affirmer que l'équilibre est réalisé, le temps d'atteinte de l'état stationnaire est divisé par 2 par rapport à l'équation (1.2.7).

D'autres propriétés de la couche de Knudsen sont étudiées. Cette couche présente une densité à sa frontière de l'ordre de 80 % de celle obtenue à la surface et la vitesse moyenne des atomes y vaut  $0,6 \bar{v}_S$ . Dans ces conditions, la vitesse est quasiment sonique (la célérité du son étant calculée dans les conditions locales). La température à la frontière n'est plus qu'environ  $0,65 T_S$ . Ces résultats sont très proches de ceux obtenus par Gusarov et Smurov [90] qui, de plus, donnent les distributions de pression. A la frontière, celle-ci tombe à 50 % de la pression de vapeur saturante supposée observée pour la vapeur à la surface.

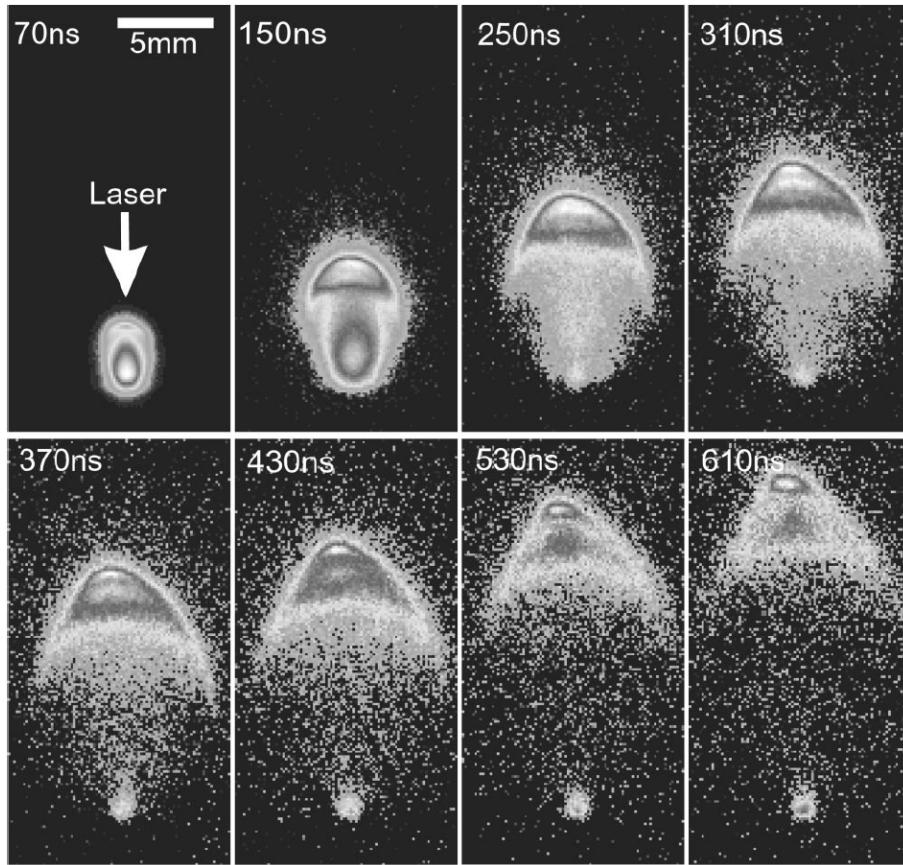


FIGURE 1.2.6 – Images à différents instants du plasma obtenu lors de l’interaction entre une impulsion laser à  $\lambda_{las} = 532$  nm et de durée  $\tau = 8$  ns et une cible d’aluminium [94] où la pression du gaz ambiant est de 20 Pa. On constate l’influence du gaz ambiant par la forme complexe induite au niveau du plasma en expansion résultant d’effets de sillage.

Lorsque la pression extérieure est voisine de 10 Pa, la propagation du plasma formé commence à être modifiée par le gaz ambiant. On peut observer sur la figure 1.2.6 l’évolution du plasma au cours du temps pour une pression de 20 Pa. A ce niveau de pression, le gaz ambiant perturbe la propagation du plasma : cette pénétration difficile induit l’existence d’un sillage derrière le plasma en expansion et lui donne une forme oblongue caractéristique.

On constate également sur la figure 1.2.6 la persistance de l’émission de rayonnement de la part de la couche de Knudsen : à 610 ns (donc bien après la fin de l’impulsion laser de 8 ns), l’imagerie révèle en effet très près de la surface l’existence d’une zone émissive. Cette zone n’est pas la seule à émettre du rayonnement. La figure 1.2.6 révèle également l’existence d’une seconde zone située relativement loin de l’échantillon : il s’agit du plasma produit dans le gaz ambiant par l’onde de choc résultant de l’évaporation extrêmement rapide de la surface. Derrière cette onde de choc, on peut observer le rayonnement de la molécule AlO lorsque le gaz ambiant est de l’air. La production de cette molécule résulte d’une chimie classique post-shock où O<sub>2</sub> et l’aluminium subissent une réaction d’échange [185]. La vitesse de propagation de cette onde de choc peut être mesurée. Dans le cas présent, elle est d’environ 15 km s<sup>-1</sup> vers 500 ns.

Pour une pression voisine de 150 Pa, le plasma est fortement perturbé par la turbulence induite par sa propagation. La vitesse de propagation diminue et n’est plus que de

$10 \text{ km s}^{-1}$ . A  $1 \text{ kPa}$ , le confinement du plasma par le gaz ambiant devient très fort et la vitesse de propagation est d'environ  $5 \text{ km s}^{-1}$  (sous des conditions de fluence  $F > F_1$ , Tao *et al.* [221] y ont mesuré par interférométrie des densités de l'ordre de  $10^{25} \text{ m}^{-3}$  et la température y est suffisamment forte pour qu'un fond continu soit émis). Pour des niveaux de pression supérieurs, la zone lumineuse reste localisée à la surface : une onde de choc est tout de même produite, mais les niveaux de pression sont trop forts pour induire l'émission de rayonnement derrière l'onde de choc. La figure 1.2.4 illustre une situation de ce genre à la pression atmosphérique : on y distingue nettement l'onde de choc sans émission lumineuse et l'émission de lumière à proximité de la surface de l'échantillon.

Des tirs laser réalisés dans des gaz ou des liquides ont également été étudiés. Nous les abordons pour illustrer l'intérêt que peut apporter la formation d'une onde de choc. Par exemple, Lim *et al.* [139, 140] réalisent dans différents gaz des tirs à proximité (2 mm) de surfaces recouvertes de particules. L'onde de choc produite peut alors leur transférer une partie de sa quantité de mouvement et permettre ainsi le nettoyage de la surface. La production d'ondes de choc présente également des applications inattendues dans le domaine ophtalmologique (pour le traitement de la cataracte [183]) ou dans le domaine du traitement du cancer [137].

Des résultats rappelés ici, nous tirons la remarque suivante :

**Remarque 2.** Placé dans le vide, un échantillon solide soumis à un tir laser nanoseconde se vaporise en formant une couche dite de Knudsen très déséquilibrée dont l'épaisseur caractéristique est d'environ 20 libres parcours moyen. A la frontière de cette couche, la vitesse est sonique et les propriétés du gaz sont, en ordre de grandeur, voisines de celles obtenues à l'équilibre dans les conditions de la surface.

Les niveaux de température derrière l'onde de choc et dans la couche de Knudsen sont élevés. Nous avons mentionné l'émission de la molécule AlO derrière l'onde de choc produite par des tirs réalisés à la pression atmosphérique sur l'aluminium. La formation de ce type de molécule résulte d'une cinétique pouvant favoriser l'excitation des atomes et induire l'émission de spectres caractéristiques. Nous avons mentionné précédemment l'étude d'impulsions laser nanosecondes en interaction avec des échantillons en carbone. Thareja *et al.* [224] reportent l'observation du rayonnement des bandes moléculaires de  $\text{C}_2$  du système de Swan (transition  $d^3\Pi_g \rightarrow a^3\Pi_u$ ) même lorsque les expériences sont menées dans le vide. D'autres études menées par Abhilasha et Thareja [1] ont montré l'existence de bandes particulières de  $\text{C}_2$  du système de Swan dites bandes de haute pression dont l'observation est imputée à une phase de recombinaison extrêmement rapide du plasma. Ainsi, même au sein du plasma formé, une certaine cinétique se déclenche. Dans la suite, nous analysons de plus près ces aspects cinétiques.

# Chapitre 1.3

## Cinétique des plasmas créés par tir laser nanoseconde

La cinétique des plasmas induits par laser nanoseconde résulte d'une part de la cinétique propre des espèces produites par l'échantillon lors du tir et d'autre part de l'interaction entre elles et les espèces constituant le gaz ambiant. La situation est par conséquent plus simple lorsque les expériences sont menées à très faible pression. Dans ces conditions, aucune onde de choc n'est produite et aucune espèce extérieure ne vient interagir avec les espèces ablatées. Pour autant, la cinétique propre des espèces résultant directement de l'interaction entre l'impulsion laser et l'échantillon reste complexe.

Pour rendre compte de cette cinétique et en particulier révéler les principaux mécanismes à l'œuvre, un nombre assez restreint de modèles ont été mis au point. Ces modèles peuvent être globalement classés en deux catégories : une première classe de modèles tente de reproduire la création du plasma alors que la seconde se place d'emblée dans la phase de recombinaison.

### 1.3.1 Cinétique de la phase de création

L'interaction d'une impulsion laser avec un matériau dépend très fortement de la nature de ce dernier. Le champ électromagnétique ne pouvant agir que sur des particules chargées, l'interaction entre l'impulsion laser et le matériau se produit essentiellement par les électrons qu'il comporte. Lorsque le matériau est diélectrique, la dernière bande d'énergie permise est saturée en électrons, ce qui empêche leur mouvement, donc la conduction. Dans le cas d'un métal, la dernière bande d'énergie n'est pas saturée : la conduction est alors possible [125].

Ainsi, un matériau diélectrique pourra être transparent à une onde électromagnétique si l'énergie qu'elle transporte ne permet pas le passage d'électrons de la dernière bande d'énergie permise vers la suivante inoccupée. Dans le cas où le matériau présente des impuretés, des électrons se trouvent déjà dans une bande d'énergie non saturée : l'onde électromagnétique transfère une partie de son énergie à ces électrons, ceux-ci étant en interaction avec les ions du réseau. Ce processus constitue une forme de Bremsstrahlung inverse (dont on étudie de près les caractéristiques dans la sous-section 2.1.4.c lorsque les électrons sont en phase gazeuse). Les électrons du matériau diélectrique cèdent alors de l'énergie aux ions le constituant via des collisions élastiques électron-phonon. L'excitation de l'énergie de vibration du réseau donc l'augmentation de sa température peut ensuite conduire à des dégâts importants d'ordre mécanique (comme par exemple des dislocations)

au sein du matériau. Si le transfert d'énergie est très intense, l'élévation de l'énergie moyenne des électrons peut conduire à l'ionisation des ions déjà présents [205] et à la transition diélectrique → conducteur.

Dans le cas de l'interaction d'une impulsions laser nanoseconde avec un métal, les électrons de la dernière bande permise absorbent l'énergie de l'impulsion par Bremsstrahlung inverse électron-ion. Cette énergie est alors transférée aux ions en raison des très fortes fréquences de collision élastique électron-phonon. Ceci explique l'augmentation de température observée dans ces conditions. La distance caractéristique sur laquelle ces phénomènes sont observés est de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres, autrement dit sur une échelle de l'ordre de l'épaisseur de peau. Notons que cette épaisseur de peau est d'environ 20 nm pour l'aluminium soumis à du rayonnement visible-proche infrarouge [19] : on peut donc qualifier ces phénomènes de surfacique à l'échelle de l'échantillon. Si l'augmentation de température est suffisante, on peut alors observer la liquéfaction puis la vaporisation de l'échantillon. Ce transfert d'énergie onde électromagnétique → électrons → réseau rend ainsi compte de tous les aspects thermiques. Les processus directs d'ionisation des ions au sein du réseau sont donc minoritaires. La production du plasma observé au cours d'une impulsions de ce type ne peut donc pas être comprise en invoquant des phénomènes d'ionisation en phase condensée. Seule l'interaction entre l'impulsion et des atomes déjà présents en phase gazeuse peut donc mener à la production d'un plasma. Le cas des impulsions laser picosecondes et femtosecondes est traité plus loin.

L'interaction laser-matière dans le cas d'atomes en phase gazeuse peut être comprise en analysant la distribution de l'énergie potentielle d'un électron périphérique dans le champ du reste de l'atome lorsque le champ extérieur résultant de l'impulsion est appliqué. Le module du champ électrique  $E_{elec}$  d'une impulsions laser de densité de flux  $\varphi_{las}$  vaut :

$$E_{elec} = \sqrt{\frac{2\varphi_{las}}{c\epsilon_0}} \quad (1.3.1)$$

où  $\epsilon_0$  est la permittivité électrique du vide et  $c$  la vitesse de la lumière. Un électron périphérique de l'atome considéré possède donc une énergie potentielle résultant de la somme de l'énergie potentielle  $U_c$  du champ coulombien due au reste de l'atome et de l'énergie potentielle  $U_{las}$  due au champ laser appliqué. Les gradients de champ électrique laser ayant pour échelle caractéristique  $c\tau$  où  $\tau$  est la durée de l'impulsion, ils peuvent être considérés comme négligeables à l'échelle de l'atome. Cette uniformité du champ électrique induit alors une variation linéaire de  $U_{las}$  selon l'équation :

$$U_{las} = -\sqrt{\frac{2\varphi_{las}}{c\epsilon_0}}z \quad (1.3.2)$$

en supposant le champ électrique orienté selon le vecteur unitaire  $\vec{e}_z$ .

On est ainsi confronté à la situation de la figure 1.3.1 : dans le sens du champ électrique laser, l'énergie potentielle peut donc devenir inférieure à l'énergie de l'électron dans le puits de potentiel. Rien n'interdit alors à l'électron de traverser la barrière de potentiel par effet tunnel : ce mode d'ionisation est appelé ionisation par effet tunnel ou ionisation de champ [45]. La largeur de la barrière étant d'autant plus faible que  $E_{elec}$  est élevé, ce processus d'ionisation est d'autant plus probable que  $E_{elec}$  est fort.

La vitesse de l'électron ainsi libéré peut être estimée. Notant  $U_i$  l'énergie d'ionisation de l'atome, l'électron a une vitesse de l'ordre de :

$$v \approx \sqrt{\frac{2U_i}{m_e}} \quad (1.3.3)$$

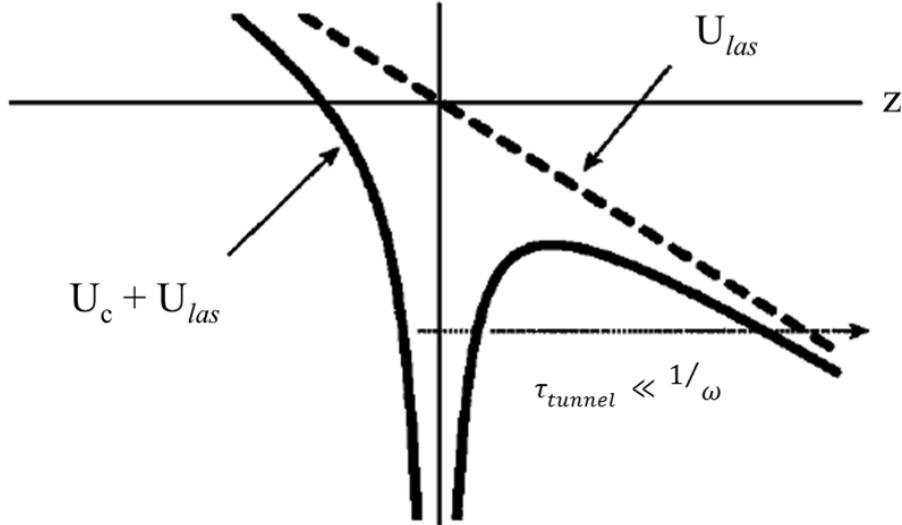


FIGURE 1.3.1 – Énergie potentielle de l'électron périphérique d'un atome dans le champ d'une impulsion laser.  $U_c$  : contribution coulombienne,  $U_{las}$  : contribution du champ laser [91].

lorsqu'il franchit la barrière de potentiel. La masse de l'électron est notée  $m_e$ . D'autre part, la largeur de cette barrière vaut :

$$\Delta \approx \frac{U_i}{e E_{elec}} \quad (1.3.4)$$

On peut donc en déduire la durée du transit de l'électron au travers de la barrière :

$$\tau_T \approx \frac{\Delta}{v} \approx \frac{1}{e E_{elec}} \sqrt{\frac{m_e U_i}{2}} \quad (1.3.5)$$

La situation illustrée par la figure 1.3.1 n'est pas figée : elle évolue au cours du temps en raison de l'évolution de  $E_{elec}$ . En effet, le champ électrique varie de manière alternative selon la période  $\tau_E$  : la durée pendant laquelle la barrière a une largeur suffisamment faible pour que l'électron ait une probabilité importante de passer par effet tunnel peut être très grossièrement estimée à  $\tau_E/4$ . Si cette durée est très faible face à celle correspondant au transit de l'électron au travers de la barrière, l'électron reste lié ; si à l'inverse, cette durée est très grande face à  $\tau_T$ , l'ionisation par effet tunnel a lieu. Dans ces conditions, il apparaît naturel de définir un paramètre adimensionnel permettant de statuer a priori sur la situation. Notons  $R_{T/E}$  le rapport :

$$R_{T/E} = \frac{\tau_T}{\frac{\tau_E}{4}} = \frac{4}{\tau_E} \frac{1}{e E_{elec}} \sqrt{\frac{m_e U_i}{2}} = \frac{1}{\pi} \omega_{las} \frac{\sqrt{2 m_e U_i}}{e E_{elec}} \quad (1.3.6)$$

où  $\omega_{las}$  est la pulsation du champ laser. On peut alors en déduire le paramètre de Keldysh [120] :

$$\gamma_K = \omega_{las} \frac{\sqrt{2 m_e U_i}}{e E_{elec}} = \pi R_{T/E} \quad (1.3.7)$$

dont la valeur permet de statuer sur la probabilité que l'ionisation par effet tunnel ait lieu. Si  $R_{T/E} \ll 1$  donc si  $\gamma_K \ll 1$ , l'ionisation par effet tunnel se produit. Si  $R_{T/E} \gg 1$  donc si  $\gamma_K \gg 1$ , l'ionisation par effet tunnel ne se produit pas.

La valeur de  $\gamma_K$  obtenue dans le cas de l’interaction entre une impulsion laser à 532 nm de fluence comprise entre  $F_0$  et  $F_1$  ( $\varphi_{las} \approx 10^{13} \text{ W m}^{-2}$ ) et un atome d’aluminium vaut environ 340 : on peut donc en conclure que l’ionisation par effet tunnel n’est pas responsable de l’apparition d’électrons libres dans le gaz, donc de la formation du plasma. Dans le cas où une impulsion picoseconde ou femtoseconde est utilisée, la densité de flux  $\varphi_{las}$  donc le champ  $E_{elec}$  seront bien supérieurs et l’ionisation par effet tunnel pourra jouer un rôle [14].

Lorsque le paramètre de Keldysh est grand devant 1, le champ électrique appliqué est inopérant et aucun effet tunnel ne se produit. Pourtant, l’expérience montre que l’ionisation peut avoir lieu. A titre d’illustration, la figure 1.3.2 montre l’évolution du nombre d’électrons et du type d’ions associé observés lors d’expériences réalisées dans du xénon en fonction de la densité de flux laser à 586 nm par Perry *et al.* [182]. Ces expériences ont été menées avec un laser picoseconde. Le nombre d’électrons observés étant proportionnel au taux d’ionisation, cette figure révèle deux caractéristiques intéressantes :

- le taux d’ionisation présente deux régimes dont le plus faible respecte une loi de puissance,
- le seuil entre les deux régimes précédents est d’autant plus élevé que l’énergie d’ionisation est élevée.

Le calcul du paramètre de Keldysh au seuil pour  $\text{Xe}^+$  donne une valeur égale à 1,9. Dans ces conditions, l’ionisation par effet tunnel est difficile : pourtant l’ionisation est clairement observée. Le calcul du paramètre de Keldysh pour les autres seuils relatifs aux autres ions permet de mettre en évidence que ces seuils se produisent pour un paramètre de Keldysh voisin de l’unité. Au-delà du seuil correspondant ainsi à  $\gamma_K \approx 1$ , l’ionisation est due à l’effet tunnel décrit précédemment, le champ  $E_{elec}$  étant suffisamment fort. En deçà du seuil, l’ionisation est assurée par un autre mécanisme.

La pente de l’évolution illustrée par la figure 1.3.2 pour  $\text{Xe}^+$  en deçà du seuil révèle encore une autre caractéristique : cette pente est égale à 6, ce qui correspond au nombre de photons (d’énergie 2,12 eV) nécessaires pour obtenir au moins l’énergie d’ionisation de  $\text{Xe}$  (12,13 eV). Les autres évolutions possèdent la même caractéristique. Il est tentant dans ces conditions d’envisager comme processus remplaçant l’ionisation par effet tunnel à faible densité de flux celui correspondant à l’absorption de 6 photons permettant l’éjection d’un électron périphérique : il s’agit de l’ionisation multiphotonique.

Le processus d’ionisation multiphotonique ne correspond pas à une transition résonnante car il se produit également pour l’hélium dont la structure des niveaux d’énergie d’excitation interdit une telle transition [143]. En effet, le premier état excité de l’hélium se situe à 19,82 eV alors que la limite d’ionisation vaut 24,59 eV. La pente de l’évolution du taux d’ionisation avec la densité de flux laser possède là aussi les mêmes caractéristiques que celles mentionnées précédemment à propos du xénon. On en conclut que dès lors que la densité de flux est suffisamment forte, un nombre suffisant de photons sont absorbés et l’ionisation se produit.

La transition n’étant pas résonnante, l’absorption ne peut être comprise sans faire intervenir des états virtuels. Ces états jouent également un rôle central dans le traitement quantique des phénomènes de diffusion comme dans le cas de la diffusion Rayleigh traitée dans le chapitre 4.3. Nous reviendrons dans la sous-section 2.1.4.b sur les détails du mécanisme de l’ionisation multiphotonique et sur l’expression utilisée dans ce modèle.

Revenons aux plasmas induits par laser et à leur modélisation. Nous avons mentionné précédemment à propos de comparaisons expérimentales relatives à  $F_0$  que l’ionisation multiphotonique a été vite comprise comme jouant un rôle important dans la transition

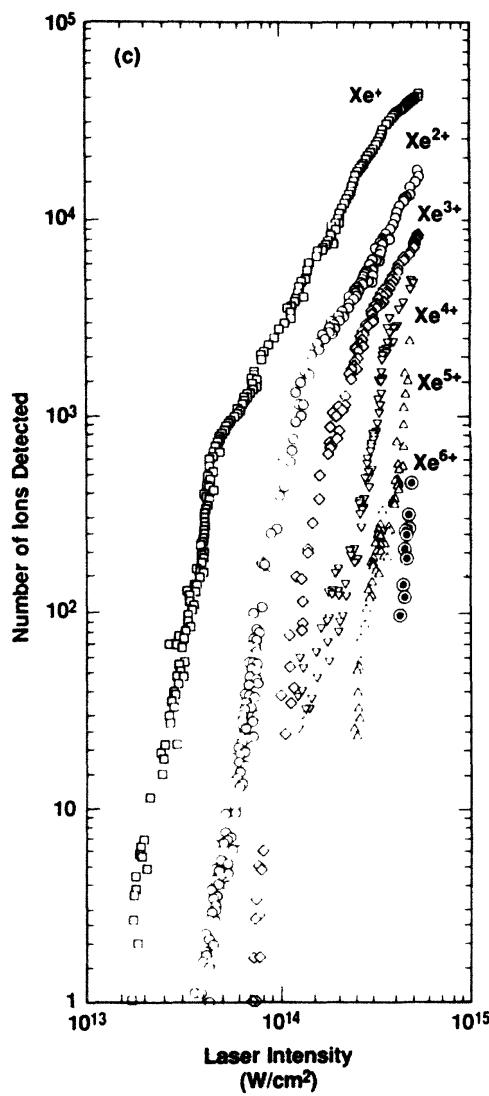


FIGURE 1.3.2 – Nombre d'électrons observés et type d'ions associé lors d'expériences de production de plasmas par tir laser dans du xénon [182].

gaz → plasma. Ce processus n'est pas pris en compte dans le modèle mis au point par Amoruso [7] décrivant la formation des plasmas induits par des impulsions laser UV en interaction avec des cibles métalliques. Ce processus permet pourtant le transfert direct de l'énergie des photons vers les lourds issus de la surface en les ionisant. Il est intéressant de préciser ici que la transition ayant une probabilité extrêmement faible d'être résonnante, l'électron produit à l'issue de ce processus possède de l'énergie cinétique qui va contribuer à l'augmentation de l'énergie du gaz électronique. De plus, le lourd une fois ionisé n'est pas nécessairement sur l'état fondamental électronique de l'ion considéré, mais peut très bien se trouver excité. Aussi va-t-on observer le mécanisme suivant :



par exemple pour ce qui concerne l'aluminium où  $k h\nu = E(Al_i^+) + \varepsilon$ . L'excitation électronique peut donc résulter de l'ionisation multiphotonique. Ces états excités peuvent ensuite se désexciter par émission spontanée en produisant des spectres caractéristiques.

Les électrons ainsi produits peuvent ensuite interagir avec l'impulsion laser incidente. Le phénomène en rapport (le Bremsstrahlung inverse) a déjà été mentionné à propos du transfert de l'énergie de l'impulsion au sein de l'échantillon. Ce processus peut se produire en présence d'atomes, comme en présence d'ions. Les détails de ce mécanisme et des commentaires sur les sections efficaces qui en rendent compte seront donnés dans la section 2.1.4. Ce phénomène consiste en l'absorption d'un photon laser par un électron dans le champ d'un lourd (neutre ou ion). Cette absorption conduit à l'augmentation de l'énergie de l'électron, donc à celle du gaz électronique : si l'hypothèse maxwellienne est vérifiée, on peut alors en conclure que la température électronique augmente. Ce processus induit l'augmentation de la fréquence de collisions inélastiques entre les électrons et les lourds, ce qui entraîne une augmentation des densités de population des niveaux excités. Il peut donc jouer un rôle majeur : c'est pourquoi il est aussi pris en compte par Amoruso dans son modèle [7]. Il faut cependant noter que l'efficacité du Bremsstrahlung inverse est d'autant meilleure que le rayonnement laser incident se situe dans la gamme infrarouge : le coefficient d'absorption par Bremsstrahlung inverse varie en effet selon  $\lambda_{las}^x$  où  $x = 2$  lorsque l'électron est dans le champ d'un neutre et où  $x = 3$  lorsque l'électron est dans le champ d'un ion. Bien que le modèle d'Amoruso ait trait au cas des impulsions laser UV, ce modèle intègre néanmoins le Bremsstrahlung inverse. Il est dommage qu'Amoruso n'ait pas développé une analyse des contributions des différents phénomènes pris en compte : dans son cas ( $\lambda_{las} = 355$  nm), l'influence du Bremsstrahlung inverse s'avère peut-être minoritaire.

La question du rôle respectif du Bremsstrahlung inverse et de l'ionisation multiphotonique dans la création du plasma semble ne pas être tranchée. Dans l'ouvrage édité par L.J. Radziemski et D.A. Cremers "Laser-induced plasma and applications" [189], ces deux processus sont clairement cités comme responsables de la formation du plasma. En revanche, seul le Bremsstrahlung inverse est pris en compte dans le modèle développé par Bogaerts *et al.* [23]. Ce modèle traite le cas du plasma produit par une impulsion laser de durée  $\tau = 10$  ns et de longueur d'onde  $\lambda_{las} = 266$  nm sur un échantillon en cuivre. Il met en évidence l'existence d'une densité de flux laser critique au-delà de laquelle le plasma écrante fortement le rayonnement incident (la densité de flux critique est dans leur cas de l'ordre de  $4.10^{12}$  W m<sup>-2</sup>). Le Bremsstrahlung inverse étant le seul processus permettant l'absorption des photons au sein du plasma (aucune transition résonnante n'est considérée), il est donc responsable de cet écrantage. On peut constater son influence sur la figure 1.3.3 montrant la distribution des densités des espèces considérées ainsi que celle

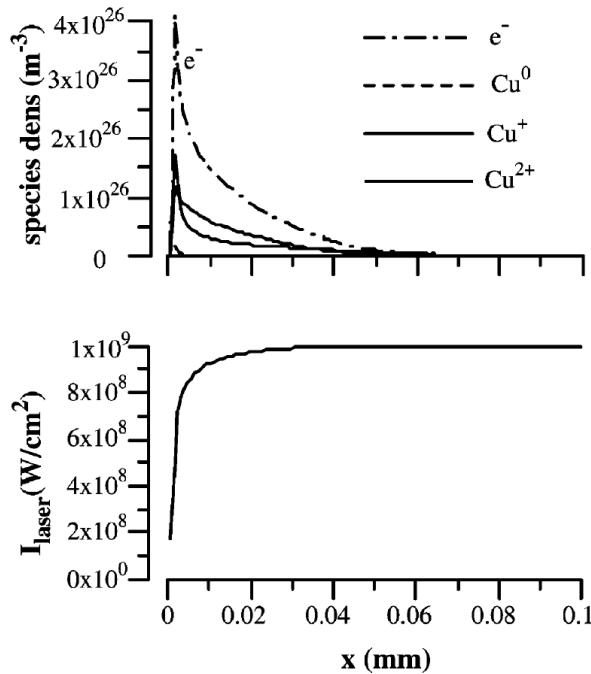


FIGURE 1.3.3 – Distribution des densités d’espèces dans le modèle de Bogaerts *et al.* [23] et répartition de la densité de flux de l’impulsion laser. La surface de l’échantillon est placée en  $x = 0$ . L’échantage de l’impulsion par le plasma est dû au Bremsstrahlung inverse.

de la densité de flux laser dans le plasma formé. La densité électronique est très élevée et l’absorption très importante à proximité de la paroi (située en  $x = 0$ ). L’énergie d’ionisation du cuivre est de 7,73 eV et l’énergie d’un photon est de 4,66 eV dans le cas du modèle de Bogaerts *et al.* : l’ionisation depuis le niveau fondamental ne nécessite donc que deux photons. Dans ces conditions, l’ionisation multiphotonique aurait pu être prise en compte. L’absence de ce phénomène dans le modèle n’empêche nullement la transition gaz  $\rightarrow$  plasma de se produire car l’énergie ainsi absorbée permet d’atteindre des niveaux de température élevés (de l’ordre de 40000 K) propices à l’obtention d’un degré d’ionisation proche de l’unité par collisions. Il faut donc que les collisions soient prises en compte en appui du Bremsstrahlung inverse pour que l’ionisation ait lieu.

Dans un modèle plus récent, Bogaerts et Chen [22, 41] étudient le même échantillon placé dans de l’hélium à la pression atmosphérique en incluant cette fois l’ionisation induite par laser mais seulement sous la forme de photoionisation. L’analyse de la contribution des processus d’ionisation montre alors que la photoionisation joue un rôle négligeable. Ceci n’est pas étonnant car la section efficace est faible. On rappelle qu’elle varie selon  $\lambda_{\text{las}}^3/n^{\ast 5}$  où  $n^*$  est le nombre quantique principal effectif [défini par l’équation (4.1.16)] du niveau subissant la photoionisation [210]. Les niveaux concernés sont proches de la limite d’ionisation : la valeur en rapport de  $n^*$  est donc très élevée. De plus, comme les niveaux concernés sont très excités, leur densité est faible durant l’évolution initiale du plasma d’autant que celui-ci est supposé à l’équilibre : aucune surdensité n’est alors possible contrairement à ce que peut éventuellement conduire une forte absorption laser. Un autre élément interdit à la photoionisation de jouer un rôle important. Le modèle de Bogaerts et Chen suppose que ce processus ne peut avoir lieu que pour les atomes. Sitôt un degré d’ionisation suffisant atteint, la densité en neutres est suffisamment faible pour

que la photoionisation ne joue plus aucun rôle. Pourtant, ce processus peut également se produire pour les états excités des ions, conduisant à un surcroît d'électrons produits pendant l'impulsion.

L'absence de l'ionisation multiphotonique dans les deux modèles que nous venons de décrire est vraisemblablement imputable en partie aux articles à la base des travaux développés. Le modèle de Bogaerts et Chen [22] s'appuie sur un article de Lunney et Jordan [149] et sur un autre article de Amoruso *et al.* [10] où il n'est fait aucune mention de l'ionisation multiphotonique. Le modèle de Bogaerts *et al.* [23] s'appuie quant à lui en partie sur un article de Rosen *et al.* [197] où l'ionisation multiphotonique n'est pas davantage abordée, alors qu'est cité l'ouvrage de L.J. Radziemski et D.A. Cremers où, pourtant, l'ionisation multiphotonique est clairement mentionnée.

Citons par ailleurs le modèle de Mazhukin *et al.* [154] développé pour l'aluminium pour des conditions variables de longueur d'onde de l'impulsion laser et où la photoionisation est le seul mécanisme de production d'ions. Enfin, Thomann *et al.* [225] développent un modèle permettant d'estimer les caractéristiques d'un plasma de titane à la fin d'une impulsion laser de longueur d'onde 308 nm. Dans ce modèle, l'ionisation multiphotonique est négligée.

Pour clarifier cette situation confuse, nous avons pris en compte Bremsstrahlung inverse, photoionisation et ionisation multiphotonique dans le modèle développé dans ce travail.

Après cette phase d'ionisation où ionisation multiphotonique et Bremsstrahlung inverse agissent de façon simultanée, les électrons sont suffisamment nombreux et énergétiques pour susciter une cinétique assez classique. A notre connaissance, le modèle d'Amoruso [7] est le plus récent et le plus abouti tentant de modéliser dans le détail l'interaction entre l'impulsion laser et le gaz formé à l'interface. Cependant, il ne développe pas de cinétique détaillée rendant compte de l'évolution ultérieure des densités de population des états excités : ceux-ci sont regroupés et leur évolution est alors globale.

Le modèle d'Amoruso est dans ce sens très proche de deux modèles plus anciens développés dans les années 1980 par le groupe Rosen-Weyl. Le premier modèle s'intéresse à la création du plasma obtenu par tir laser microseconde sur une cible de titane [196] et le second à celle d'un plasma obtenu dans l'argon à la pression atmosphérique sur une gamme étendue de durée d'impulsion [247]. Alors que le Bremsstrahlung inverse est pris en compte dans les deux modèles, l'ionisation multiphotonique n'est intégrée aux mécanismes de formation du plasma que dans le modèle de Weyl. Il est intéressant de noter que dans le cas du modèle développé pour le titane en 1982, Rosen *et al.* tiennent compte de la vaporisation de la surface au travers d'une loi classique de Herz-Knudsen. Le chauffage de l'échantillon est quant à lui très simplifié. Nous reviendrons sur ces deux points (loi classique de Hertz-Knudsen et chauffage de l'échantillon) lors de la description de notre modèle.

Le modèle de 1982 portant sur le titane prend en compte les états excités de manière globale, sans qu'une cinétique individuelle ne soit développée. Les états excités réunis en un tout sont considérés comme étant à l'équilibre de Boltzmann à la température électronique, les fréquences de collisions inélastiques électrons-lourds étant suffisamment élevées.

Une approche semblable mais déjà orientée vers une description plus fine est développée dans le modèle de 1985 portant sur l'argon. Les états métastables de l'argon (autour de 11,5 eV) sont décrits indépendamment des états davantage excités. Cette approche représente un progrès par rapport à la précédente et constitue une étape importante sur

le chemin de l'élaboration d'un véritable modèle collisionnel-radiatif.

Hormis les modèles précédents, la littérature semble ne pas mentionner d'autres études théoriques portant sur la création du plasma à proprement parler. En conclusion, nous pouvons faire la remarque suivante :

**Remarque 3.** La formation d'un plasma induit par impulsion laser nanoseconde est assurée par ionisation multiphotonique et Bremsstrahlung inverse. Les collisions inélastiques électrons-lourds semblent jouer un rôle d'appoint de ces mécanismes.

Nous avons mentionné à la page 14 les résultats expérimentaux mis en évidence concernant le seuil en fluence  $F_0$  du carbone (Hermann *et al.* [102]). Celui-ci est beaucoup plus élevé que pour les éléments métalliques pour lesquels l'énergie d'ionisation est deux fois plus faible. C'est une preuve expérimentale très convaincante du rôle central joué par l'ionisation multiphotonique.

## 1.3.2 Cinétique de la phase de recombinaison

On trouve bien plus d'études portant sur cette phase de recombinaison que sur la phase de création, tant du point de vue expérimental que théorique. Pour ce qui concerne les résultats expérimentaux, les travaux déjà cités de Hermann *et al.* [102] ont mis en évidence une cascade de recombinaison caractérisée par un retard très net du maximum d'intensité de raies ioniques puis atomiques dont les transitions correspondantes ont des niveaux de départ de moins en moins excités. Les expériences en question ont été réalisées sur un échantillon de carbone. Ces résultats montrent que très rapidement des ions sont produits, ce qui bien sûr soutient l'idée que l'ionisation multiphotonique, le Bremsstrahlung inverse et les collisions inélastiques électrons-lourds jouent un rôle dans la formation du plasma, et qu'une fois l'impulsion laser terminée, une cascade de recombinaison se produit. Les durées pendant lesquelles les spectres sont observés montrent que les temps caractéristiques de recombinaison sont beaucoup plus longs que ceux correspondant à la phase de création. Vu les fréquences de collisions inélastiques électrons-lourds, cela signifie que ces collisions vont jouer un rôle central.

Par ailleurs, certaines espèces apparaissent et émettent du rayonnement pendant cette phase de recombinaison alors qu'elles n'existent pas pendant la phase de création du plasma. Nous avons déjà cité les travaux de Piehler *et al.* [185] réalisés dans l'air sur l'aluminium et mettant en évidence l'existence de la molécule AlO : l'influence du gaz ambiant dans la cinétique par le mélange qu'il induit est donc très importante. Nous allons ainsi distinguer dans la suite les travaux relatifs à des cibles placées à pression réduite et les autres où la pression ambiante est nettement supérieure. Les travaux en question sont d'ordre théorique : cela nous permet dans la suite de discuter les modèles développés dans ce travail.

Pour ce qui est des modèles développés où l'échantillon est placé dans le vide, nous avons déjà discuté le modèle de Amoruso [7]. Dans ce modèle, les électrons, les ions, les neutres et leurs états excités sont considérés séparément. Ce modèle est basé sur l'hypothèse d'un déséquilibre thermique simple : chaque espèce est supposée être en équilibre de Maxwell-Boltzmann, mais les températures de ces distributions sont supposées différentes. Les électrons ont ainsi leur température  $T_e$  indépendante de celle des lourds notée  $T_A$ . Ce type de modèle est nommé "modèle à deux températures" ou plus simplement "modèle

2T". Nous verrons dans la suite que l'hypothèse d'un déséquilibre thermique peut être poussée en supposant que les fonctions de distribution en énergie cinétique des particules ne sont pas maxwelliennes. Les collisions élastiques électrons-lourds sont prises en compte en raison du déséquilibre thermique et les collisions inélastiques électrons-lourds sont également intégrées au modèle du fait du déséquilibre d'excitation.

Ce cadre d'hypothèses est à peu près celui des modèles de Rosen *et al.* [197] sur l'aluminium. Pour le titane, le modèle de Rosen *et al.* [196] respecte également ce cadre à quelques nuances près. Citons enfin le modèle de Bogaerts [23] se rapportant au cuivre où l'équilibre thermodynamique local est supposé. Le modèle de Weyl et Rosen [247] est particulier car il s'intéresse à une décharge obtenue dans l'argon sans la présence d'échantillon solide.

Le dernier modèle traitant d'une situation voisine de celle détaillée dans la suite de ce mémoire est celui de Bogaerts et Chen [22] sur le cuivre où l'échantillon est placé dans l'hélium.

Les autres modèles ne s'intéressent pas à la phase de création et cherchent uniquement à reproduire la recombinaison du plasma, celui-ci se développant dans le vide. Les travaux en question sont dus au groupe de Capitelli. Ce groupe s'est fait une spécialité du couplage de l'équation de Boltzmann et des modèles cinétiques. Il s'agit d'une approche puissante dans la mesure où elle s'affranchit de l'hypothèse maxwellienne pour la translation des électrons. Notons cependant qu'elle présente deux contreparties qui peuvent s'avérer rédhibitoires : la résolution de l'équation de Boltzmann nécessite de travailler dans l'espace de l'énergie des électrons, ce qui entraîne de coûteux temps de calculs, et l'absence de données sur les sections efficaces limite assez souvent l'emploi de cette procédure de couplage. Hormis les travaux menés par ce groupe sur le titane [36, 37, 38], ceux portant sur l'hydrogène [48], l'azote [35] et l'aluminium [186] atteignent ce haut degré de sophistication. Ils reproduisent des situations où la cinétique se développe dans le vide [35, 36, 38, 48, 186] mais également sous azote [37]. Tous incorporent une cinétique détaillée au sens où les états excités sont considérés indépendamment les uns des autres.

Le modèle de Babushok *et al.* [15] traite du mélange subi par un plasma induit par laser sur un échantillon en plomb et l'air environnant. La phase de création n'est pas étudiée. Ce modèle intègre un schéma cinétique de l'air particulièrement riche où électrons et lourds sont supposés en équilibre thermique. Ce schéma est ensuite intégré à un modèle hydrodynamique permettant de déduire aux temps longs la géométrie du plasma résultant de son interaction avec l'air ambiant, une onde de choc étant produite.

Citons également le modèle développé par Travallé *et al.* [229]. Il s'agit d'un modèle collisionnel-radiatif où l'hypothèse quasi stationnaire (notée QSS dans la suite) est adoptée. L'objectif est d'estimer les conditions d'obtention de l'équilibre thermodynamique local et d'ainsi vérifier les critères habituellement utilisés comme celui de McWhirter [74].

Il est intéressant de discuter ce critère pour mettre en perspective les modèles décrits précédemment. Rappelons que ce critère établit une limite minimale en terme de densité électronique au delà de laquelle les collisions l'emportent sur les échanges radiatifs concernant les états excités : ces collisions assurent alors un équilibre d'excitation à la température des électrons  $T_e$ . Si :

$$n_{e,\text{cm}^{-3}} \geq 1,6 \cdot 10^{12} T_{e,\text{K}}^{1/2} (\Delta E_{\text{eV}})^3 \quad (1.3.9)$$

le plasma peut être considéré comme à l'équilibre d'excitation selon McWhirter. Dans l'équation précédente,  $\Delta E$  représente la différence d'énergie la plus forte entre deux niveaux excités entre lesquels une transition radiative peut être observée.

L'équation (1.3.9) repose sur les hypothèses suivantes : le rapport entre les vitesses de dépopulation par collisions électroniques et par émission spontanée doit être dans un rapport au moins égal à 10, le plasma doit être uniforme et à l'état stationnaire. Si ces conditions ne sont pas remplies, on peut alors remettre en cause la validité du critère de McWhirter. Cristoforetti *et al.* [50] discutent ce critère et aboutissent à la conclusion qu'il n'a rien d'universel puisqu'il dépend des atomes concernés, même dans le cas de conditions semblables. Par ailleurs, la tentation est forte de considérer ce critère comme suffisant pour statuer sur l'équilibre thermodynamique local. Pourtant, les conditions d'obtention de l'équation (1.3.9) qui viennent d'être rappelées permettent de comprendre que ce critère ne concerne que l'excitation. Ainsi, il ne saurait être utilisé pour statuer, par exemple, sur l'équilibre d'ionisation. Barthélémy *et al.* [17] le mettent en particulier en évidence expérimentalement sur un plasma produit par une impulsion laser de 10 ns à 308 nm sur une cible d'aluminium selon une fluence de l'ordre de  $10 \text{ J cm}^{-2}$ . Les températures d'excitation (calculées à partir de graphiques de Boltzmann) sont inférieures aux températures d'ionisation, alors que le critère de McWhirter est vérifié : l'équilibre thermodynamique local n'est donc pas nécessairement réalisé si le critère de McWhirter est respecté. Des résultats semblables sont obtenus par Galmed et Harith [76] dans le cas d'impulsions laser dans l'infrarouge.

Il faut également aborder le problème des échanges radiatifs subis par le plasma. Dans la plupart des modèles, le rayonnement est négligé. Parmi les modèles cités précédemment, seuls ceux dus à Amoruso [7] et Bogaerts *et al.* [23] intègrent le Bremsstrahlung direct. L'émission spontanée y est négligée alors qu'elle est prise en compte dans certains autres [48, 154, 186, 197, 229]. La recombinaison radiative est par ailleurs parfois considérée [36, 37, 38, 48, 186, 197, 229]. Dans ces conditions, il est difficile d'effectuer un bilan de population réaliste des états excités, ce qui empêche de procéder à une étude critique du critère de McWhirter. Les échanges radiatifs jouent pourtant un rôle important comme le bilan entre collisions et rayonnement réalisé pour l'établissement du critère de McWhirter le suggère. Des travaux s'intéressent de près aux conséquences de l'épaisseur optique du plasma. Par exemple, Aguilera et Aragon [2] s'intéressent aux conséquences de l'auto-absorption sur l'évolution de l'intensité de raies d'émission du fer, dans l'optique du diagnostic de surface par LIBS. Ce type d'études a poussé plusieurs chercheurs à intégrer l'auto-absorption dans le traitement des raies observées afin de s'affranchir de toute calibration [29, 226]. Un certain nombre de brevets ont d'ailleurs été déposés, parmi lesquels on peut en particulier citer celui de Hermann *et al.* en 2008 (sous le numéro FR08/06203) déposé auprès du CNRS.

Ainsi, si les objectifs de la modélisation du plasma sont d'estimer les écarts à l'équilibre d'excitation ou d'ionisation, il est pertinent de développer des approches de cinétique détaillée en intégrant le maximum de processus élémentaires. Les modèles décrits précédemment ne font pas tous ce choix, en particulier pour ce qui concerne la phase de recombinaison. Ils reposent pour certains sur des hypothèses qui ne sont pas nécessairement vérifiées et dont la vérification est ainsi impossible.

A la suite de la discussion des modèles précédents, on peut faire la remarque suivante :

**Remarque 4.** La relaxation d'un plasma induit par impulsion laser nanoseconde est assurée par les pertes radiatives ainsi que par les collisions électrons-lourds assurant son expansion, le possible mélange avec les espèces du gaz environnant franchissant l'onde de choc lorsque ce gaz existe, et surtout la recombinaison.

Ces processus mènent en effet à une diminution des densités de population des états excités, donc à une désexcitation globale du plasma. Ceci explique que les spectres de raies en émission ne soient observés qu'après la fin de l'impulsion laser et pendant quelques dizaines de microsecondes [12].

## Chapitre 1.4

# Bilan sur les modèles recensés dans la littérature

Afin d'avoir une vue synthétique des principales caractéristiques des différents modèles décrits précédemment, les tables 1.4.1 et 1.4.2 sont présentées. La table 1.4.1 regroupe les modèles traitant simultanément des phases de création et de recombinaison du plasma. La table 1.4.2 regroupe ceux développés uniquement en recombinaison. Pour ce qui concerne l'aluminium, on peut conclure que le modèle le plus abouti traitant à la fois de la création et de la recombinaison du plasma reste à ce jour celui élaboré par Rosen *et al.* en 1982 [197]. Pour ce qui concerne les modèles élaborés spécifiquement pour la recombinaison, celui développé par Pietanza *et al.* en 2010 [186] est le plus détaillé en raison de la résolution de l'équation de Boltzmann mise en œuvre.

Ces deux modèles ont un point commun : ils se situent à un niveau d'hypothèses permettant de décrire le déséquilibre thermodynamique du plasma. Le plasma est en effet produit suite à un déséquilibre très fort entre rayonnement et matière au moment où l'impulsion laser atteint la surface. La suite de son évolution va être une course vers l'équilibre assurée par des phénomènes élémentaires collisionnels et radiatifs. Durant toute son évolution, le plasma est hors équilibre thermodynamique : il ne l'atteint rigoureusement qu'à l'issue de cette évolution. Pendant qu'elle se produit, le plasma atteint éventuellement certains équilibres partiels qu'il est difficile de qualifier *a priori*. Seule une étude détaillée dans le cadre des hypothèses les moins restrictives peut permettre de reproduire son comportement et fournir des réponses intéressantes concernant les équilibres partiels dont les conditions d'obtention ne sont pas nécessairement claires. Du point de vue cinétique, il est impossible d'atteindre ces objectifs sans élaborer un schéma cinétique détaillé, autrement dit en considérant les états excités de manière indépendante.

Dans le groupe Plasmas du CORIA, cette approche était par état a déjà été mise en œuvre avec succès dans le cas de plasmas atomiques (He, Ar et C) ainsi que dans celui de plasmas moléculaires (mélanges N<sub>2</sub> - O<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, CO et C<sub>2</sub>) essentiellement dans le cadre de travaux liés aux entrées atmosphériques planétaires de véhicules spatiaux [32, 33]. Les plasmas en rapport présentent eux aussi un degré de déséquilibre initial fort, même si la source en est différente : la transition hypersonique → subsonique de l'écoulement à proximité du véhicule de rentrée provoque une forte augmentation de la température du gaz (quelques 10<sup>4</sup> K) incompatible avec sa composition chimique. Cette transition se produit au passage d'un choc détaché du véhicule. Pour atteindre l'équilibre dans ces nouvelles conditions, l'écoulement est alors le siège d'une cinétique de dissociation-ionisation dont l'approche la plus pertinente consiste à traiter les états excités des espèces

Modèle	<i>Amoruso</i>	<i>Rosen et al.</i>	<i>Mazhukin et al.</i>	<i>Rosen et al.</i>	<i>Thomann et al.</i>	<i>Bogaerts et Chen</i>	<i>Bogaerts et al.</i>	<i>Weyl et Rosen</i>
Référence	[7]	[197]	[154]	[196]	[225]	[22]	[23]	[247]
Année	1999	1982	2003	1982	1997	2005	2003	1985
Élément	Al	Al	Al	Ti	Ti	Cu	Cu	Ar
Transport énergie cible	×	✓	×	✓	✓	✓	✓	cible
Gaz ambiant	×	×	×	×	×	He	×	Ar
Bremsstrahlung inverse	✓	✓	×	✓	✓	✓	✓	✓
Photoionisation	✓	✓	✓	✓	✓	✓	×	✓
Ionisation multiphotonique	×	×	×	×	×	×	×	✓
Pas d'états excités	×	×	×	×	✓	✓	✓	✓
États excités groupés	✓	✓	×	✓	×	×	×	✓
États indépendants	×	×	✓	×	×	×	×	×
États excités QSS	×	×	×	✓	×	×	×	×
Éq. thermique des espèces	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓
Modèle 2T	✓	✓	✓	✓	×	×	×	✓
Pertes radiatives Bremss.	✓	×	×	×	×	×	✓	×
Émission spontanée	×	✓	✓	×	×	×	×	×
Recombinaison radiative	×	✓	×	×	×	×	×	×

TABLE 1.4.1 – Modèles de plasmas induits par laser et caractéristiques comparatives (QSS signifie état quasi stationnaire). Les symboles ✓ et × signifient respectivement que le phénomène est considéré ou ne l'est pas.

de manière indépendante. Cette approche présente également un autre avantage : aucun scénario n'étant privilégié concernant la façon dont évoluent les densités de population (seules des hypothèses sur les types de processus élémentaires sont faites concernant le couplage des états concernés), ce type de cinétique détaillée peut également permettre de reproduire le comportement du plasma en recombinaison. Dans le cas des plasmas d'entrée atmosphérique planétaire, on peut ainsi traiter l'interaction entre le plasma et la surface du véhicule de rentrée à l'aide du même schéma cinétique détaillé utilisé pour le passage du choc.

Cette expérience dans le traitement des situations de déséquilibre de ce genre a naturellement conduit à orienter très nettement le travail de thèse présenté dans ce mémoire. L'évolution du plasma résultant des premiers instants où l'impulsion laser interagit avec la surface de l'échantillon, nous avons décidé de modéliser cette phase en adoptant une approche état par état, autrement dit en développant un schéma cinétique détaillé intégrant plusieurs processus élémentaires collisionnels et radiatifs. Ce modèle sera appelé dans la suite "modèle collisionnel-radiatif" ou modèle CR. Les enseignements tirés de cette étude pourront éclairer des résultats expérimentaux encore trop peu nombreux concernant cette phase de création. En effet, à notre connaissance, seuls les travaux de Liu *et al.* [141] et de Lu *et al.* [148] tous deux sur le silicium, de De Giacomo sur le titane [52], de Diwakar et Hahn sur l'air [58], de Hermann *et al.* sur le titane [101] et de Yui *et al.* sur l'eau [254] se sont focalisés sur ces premiers instants.

Modèle	<i>Pietanza et al.</i>	<i>Travaillé et al.</i>	<i>Casavola et al.</i>	<i>Casavola et al.</i>	<i>Casavola et al.</i>	<i>Colonna et al.</i>	<i>Capitelli et al.</i>	<i>Babushok et al.</i>
Référence	[186]	[229]	[36]	[37]	[38]	[48]	[35]	[15]
Année	2010	2009	2003	2009	2003	2001	2000	2003
Élément	Al	Al	Ti	Ti	Ti	H	N	Pb
Gaz ambiant	×	×	×	N <sub>2</sub>	×	×	×	N <sub>2</sub> -O <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O
Pas d'états excités	×	×	×	×	×	×	×	×
États excités groupés	×	×	×	×	×	×	×	×
États indépendants	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓
États excités QSS	×	✓	×	×	×	×	×	×
Éq. thermique espèces	×	✓	✓	✓	✓	×	×	✓
Modèle 2T	✓	✓	×	×	×	✓	✓	×
Pertes radiat. Bremss.	×	×	×	×	×	×	×	×
Émission spontanée	✓	✓	×	×	×	✓	×	×
Recombinaison radiat.	✓	✓	✓	✓	✓	✓	×	×

TABLE 1.4.2 – Modèles de relaxation de plasmas induits par laser et caractéristiques comparatives (QSS signifie état quasi stationnaire). Les symboles ✓ et × signifient respectivement que le phénomène est considéré ou ne l'est pas.

Les tables 1.4.1 et 1.4.2 précédentes indiquent quelle orientation donner au modèle pour qu'il soit le plus réaliste possible :

- l'**ionisation multiphotonique**, la **photoionisation** et le **Bremsstrahlung inverse** sont pris en compte,
- l'**équilibre thermique des espèces** est supposé.

Cette hypothèse nécessite l'estimation des temps caractéristiques de couplage d'une même espèce par collisions élastiques. Pour les électrons, ce temps caractéristique vaut :

$$\tau_{e-e} \approx \frac{3}{2\sqrt{\pi}} \left( \frac{4\pi\epsilon_0}{e^2} \right)^2 \frac{\sqrt{m_e} (k_B T_e)^{3/2}}{n_e \ln \Lambda} \quad (1.4.1)$$

selon Spitzer [219] avec les notations habituelles et où  $\ln \Lambda$  est le logarithme coulombien. Pour les conditions des plasmas obtenus par tir laser sur des cibles solides selon une fluence inférieure à  $F_1$  ( $n_e \approx 10^{25} \text{ m}^{-3}$  et  $T_e \approx 10000 \text{ K}$ ), on obtient  $\tau_{e-e} \approx 10^{-14} \text{ s}$ . Ce temps caractéristique est très court : il indique que le couplage des électrons par collisions élastiques est excellent. L'équation de l'énergie des électrons peut donc être appliquée en supposant que leur énergie moyenne individuelle est  $3 k_B T_e / 2$  où  $T_e$  est la température électronique.

Les collisions inélastiques électrons-lourds font intervenir des énergies électroniques importantes car ce sont des processus à seuil. La partie de la fonction de distribution en énergie des électrons ainsi concernée pour le calcul des taux de réaction correspond à des ordres de grandeur ( $\varepsilon >$  quelques eV) pour lesquels le couplage par collisions élastiques manque d'efficacité. Dans ces conditions, la fonction de distribution des électrons est souvent hors équilibre sur cette gamme d'énergie. C'est

une des raisons principales à l'appui de la résolution de l'équation de Boltzmann dans les milieux réactifs. Comme la discussion à propos des travaux du groupe de Capitelli l'a souligné, il faut alors disposer de l'évolution de la section efficace avec  $\varepsilon$ . Ces données sont souvent inconnues. On dispose en général plutôt d'un taux de réaction thermique où la fonction de distribution est maxwellienne. En dehors des décharges électriques (continues [86, 173], micro-ondes [6], radio-fréquence [113]) où la fonction est loin d'être maxwellienne en raison du champ électrique appliqué, les approches cinétiques développées en la supposant maxwellienne donnent d'assez bons résultats. Cela signifie que même si la fonction de distribution n'est pas réellement maxwellienne, supposer qu'elle l'est permet malgré tout de reproduire un comportement réaliste. C'est pourquoi la plupart des études recensées dans les tables 1.4.1 et 1.4.2 font cette hypothèse. Nous supposons dans la suite que la fonction de distribution en énergie des électrons est maxwellienne : des taux thermiques seront ainsi obtenus par intégration sur cette distribution du produit entre la section efficace et la vitesse relative entre partenaires de collision.

Pour ce qui concerne les lourds, l'équation (1.4.1) peut être appliquée en remplaçant  $T_e$  par  $T_A$  et  $m_e$  par  $m_A$ , si le plasma est essentiellement constitué d'ions. Le logarithme coulombien ayant dans des conditions semblables de densité une valeur à peu près identique, on en déduit que  $\tau_{A-A} \approx 10^{-12}$  s. Si le plasma n'est pas très ionisé, les collisions élastiques ont préférentiellement lieu entre neutres. Dans ce cas, le temps caractéristique est  $\tau_{A-A} \approx 10^{-10}$  s [32]. Dans les deux cas, l'équation de l'énergie des lourds peut donc être appliquée en supposant l'équilibre de Maxwell-Boltzmann réalisé à la température  $T_A$ , les temps caractéristiques cinétiques étant plus longs comme nous le verrons plus loin.

- on suppose un **déséquilibre thermique électrons-lourds** comme dans la plupart des modèles s'intéressant à la phase de création,
- les **pertes radiatives par Bremsstrahlung** sont prises en compte,
- l'**émission spontanée** est considérée,
- la **recombinaison radiative** est négligée comme dans la plupart des études portant sur la phase de création.

Un dernier commentaire doit être apporté en ce qui concerne le couplage du modèle collisionnel-radiatif avec la surface. Ce couplage s'est avéré difficile à réaliser comme nous le verrons dans le chapitre 3.2. Nous avons donc choisi de développer en parallèle deux approches. La première consiste à ne pas résoudre les équations de bilan dans l'échantillon et à supposer une évolution indépendante mais réaliste de la température de surface : nous dénommons "modèle A" dans la suite ce modèle CR. La seconde intègre la résolution de ces équations de bilan : le modèle CR ainsi couplé sera dans la suite nommé "modèle B". Des conclusions intéressantes pourront être tirées de leur confrontation.

Retenant la présentation des tables 1.4.1 et 1.4.2, on peut en déduire la table 1.4.3 résumant les hypothèses des modèles développés durant ces travaux de thèse.

Modèle	<i>Morel et al.</i>	<i>Morel et al.</i>
Référence	[167]	
Année	2010	
Élément	Al	Al
Transport d'énergie dans la cible	Modèle A → ×	Modèle B → ✓
Gaz ambiant	×	×
Bremsstrahlung inverse	✓	✓
Photoionisation	✓	✓
Ionisation multiphotonique	✓	✓
Pas d'états excités	×	×
États excités des atomes groupés	×	×
États totalement indépendants	✓	✓
États excités QSS	×	×
Équilibre thermique des espèces	✓	✓
Déséquilibre e-lourds	✓	✓
Pertes radiative par Bremsstrahlung	✓	✓
Émission spontanée	✓	✓
Recombinaison radiative	×	×

TABLE 1.4.3 – Hypothèses des modèles collisionnel-radiatifs développés dans ce mémoire (QSS signifie état quasi stationnaire). Les symboles ✓ et × signifient respectivement que le phénomène est considéré ou ne l'est pas.



## Chapitre 1.5

# Dynamique d'un plasma induit par laser femtoseconde

Les impulsions courtes (picosecondes ou femtosecondes) suscitent depuis quelques années un intérêt particulier. Un plasma produit par impulsion courte sur un échantillon solide présente des temps caractéristiques du même ordre de grandeur que celui obtenu par impulsion nanoseconde. Cependant, il n'écrante pas l'impulsion, celle-ci ayant un temps caractéristique largement inférieur [10]. Cela permet ainsi un dépôt maximal d'énergie à la surface. De plus, ce dépôt évite la liquéfaction de l'échantillon, ce qui rend alors les cratères d'ablation plus nets. Ces deux particularités expliquent en grande partie l'attention portée par la communauté de la technique de diagnostic par LIBS à l'interaction impulsion courte - matériau [203].

Certaines hypothèses des modèles développés ici sont encore valables pour ce type d'interaction. Une adaptation de ces modèles aux impulsions courtes est donc tout à fait envisageable et constituerait une très intéressante perspective de ces travaux de thèse. Dans la suite, nous donnons quelques informations sur les caractéristiques des plasmas produits par interaction entre une impulsion femtoseconde et un solide.

Beaucoup d'études expérimentales ont été menées sur :

- des conducteurs comme le nickel [9], l'aluminium [136, 216], le cuivre [152, 188], l'argent [152] et l'acier [42],
- des semi-conducteurs comme le silicium [9, 39], l'arséniure de gallium [39] et sur
- des diélectriques comme le verre [201].

Les résultats principaux retenant notre attention sont les suivants :

- comme dans le cas des impulsions nanosecondes, il existe pour les impulsions femtosecondes des seuils en fluence [10],
- lorsque l'ablation se produit, les cratères obtenus sont effectivement plus nets qu'en impulsion nanoseconde (à ce propos, on peut comparer sur la figure 1.5.1 les images obtenues par microscopie électronique à balayage d'échantillons d'acier soumis à une impulsion femtoseconde, picoseconde ou nanoseconde par Chichkov *et al.* [42]),
- l'émission d'un fond continu est observée après l'impulsion comme dans le cas nanoseconde, mais son intensité est globalement inférieure [216],
- l'ablation en impulsion femtoseconde peut conduire à la production de nanoparticules presque indépendamment des propriétés du matériau utilisé et des conditions du tir [9].

Ce dernier point révèle que l'interaction impulsion femtoseconde - matériau avant la production du plasma est fondamentalement différente du cas nanoseconde. En particu-

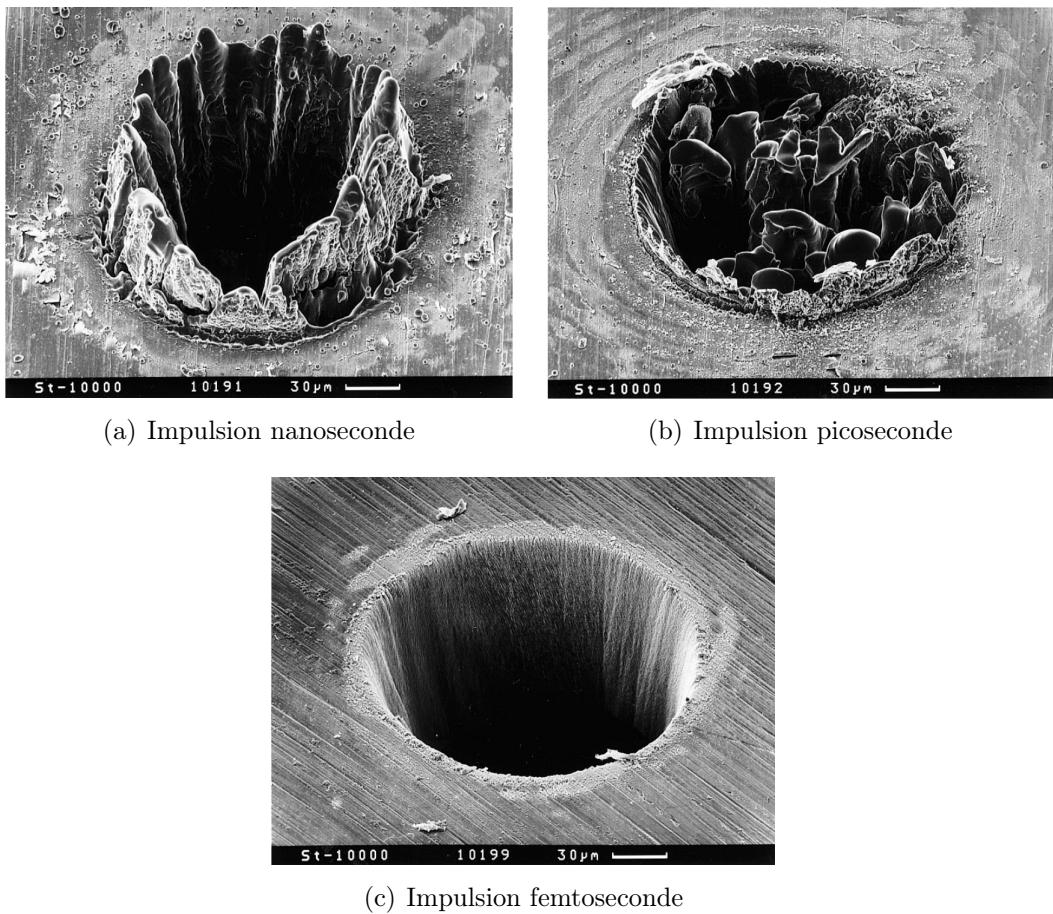


FIGURE 1.5.1 – Images obtenues par microscopie électronique à balayage de la surface d'un échantillon d'acier soumis à une impulsion (a) nanoseconde, (b) picoseconde et (c) femtoseconde à  $\lambda_{las} = 78$  nm, par Chichkov *et al.* [42].

lier, il révèle que les aspects thermiques, évidemment présents puisque le plasma au final produit présente des niveaux de température élevés, jouent sur le matériau un rôle nettement inférieur. Des études théoriques l'ont très clairement mis en évidence. Comme dans le cas nanoseconde, le champ électrique de l'impulsion interagit avec les électrons. Cependant, dans le cas femtoseconde, la durée de l'impulsion est inférieure ou du même ordre de grandeur que le temps de relaxation électron-phonon au sein du matériau [116, 246] : on ne peut donc conclure au bon couplage entre les électrons et le réseau et par conséquent à un transfert quasiment instantané de l'énergie au matériau. Les électrons se trouvent alors dans le rôle d'un intermédiaire énergétique entre l'impulsion et le réseau, rôle qu'ils jouent par ailleurs en phase gazeuse entre l'impulsion et les lourds dans le cas nanoseconde. Dans ces conditions, des approches théoriques où électrons et réseau sont traités de manière indépendante ont été très logiquement développées. La fréquence de relaxation des électrons restant suffisamment élevée, ceux-ci sont caractérisés par la température électronique  $T_e$  [30] : ainsi, des modèles à deux températures ont été mis au point.

Dans le cadre de ces modèles, les résultats obtenus par Wellershoff *et al.* [246] méritent quelques commentaires car ils illustrent parfaitement les différences de comportement du matériau résultant du type d'impulsion utilisée. La figure 1.5.2 montre la relaxation des deux températures à la surface d'un échantillon d'or dans le cadre du modèle 2T développé dans les conditions  $\tau = 200$  fs,  $\lambda_{las} = 400$  nm sous une fluence de  $23 \text{ mJ cm}^{-2}$ . On

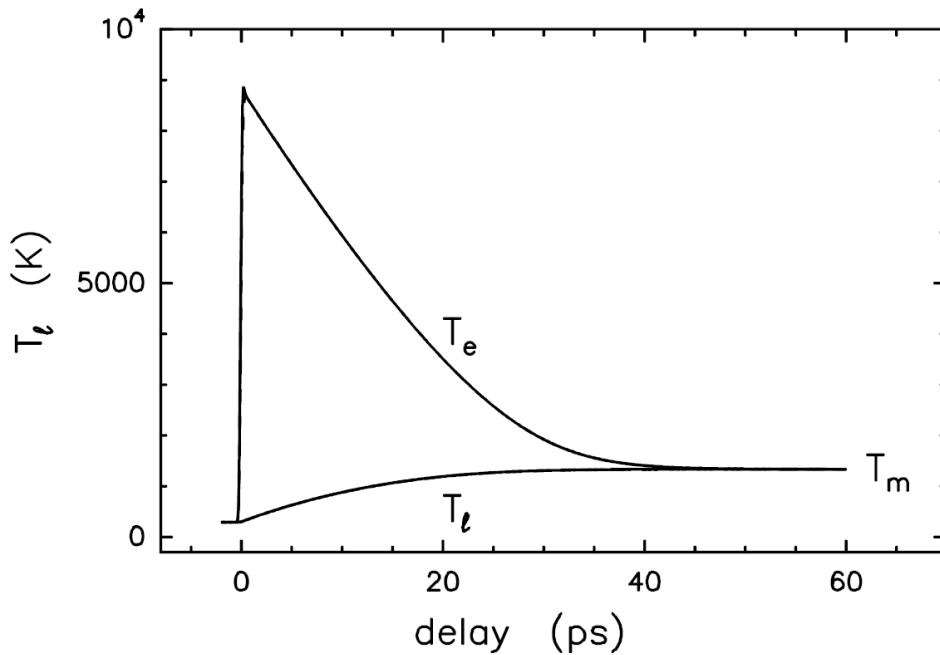


FIGURE 1.5.2 – Évolution de la température de surface d'un échantillon d'or sous impulsion laser femtoseconde ( $\tau = 200$  fs,  $\lambda_{las} = 400$  nm,  $F = 23$  mJ cm $^{-2}$ ) obtenue dans le cadre du modèle 2T de Wellershoff *et al.* [246].

constate que la température électronique subit une très forte augmentation avant de se relaxer rapidement, ce qui induit l'augmentation de la température du réseau. On comprend facilement dans ces conditions l'émission à l'interface d'électrons très énergétiques [11]. La figure 1.5.3 montre l'évolution dans le temps du champ de température obtenu dans un échantillon d'or dans les mêmes conditions de fluence en utilisant une impulsion nanoseconde ou femtoseconde. On constate que l'échauffement du matériau est bien plus localisé à l'interface dans le cas femtoseconde que dans le cas nanoseconde. De plus, cet échauffement est plus fort dans le cas femtoseconde. Enfin, les durées caractéristiques de chauffage sont évidemment plus courtes dans ce cas.

Les échauffements précédents sont obtenus dans des conditions de fluence modérée : aucun autre phénomène ne se produit alors dans le matériau. Lors de l'interaction avec une impulsion femtoseconde de fluence supérieure, celui-ci est le siège d'élévations de température si brutales qu'une intense éjection de matière en résulte : c'est l'ablation. Ceci explique qu'il est possible de produire des nanoparticules comme nous l'avons déjà signalé.

La modélisation de l'ablation en impulsion femtoseconde connaît un net développement depuis l'utilisation de techniques empruntées à la dynamique moléculaire. Par exemple pour ce qui concerne le silicium, Lorazo *et al.* modélise la fragmentation du matériau ainsi obtenu alors qu'il a partiellement fondu [144]. Les résultats montrent une dispersion de la matière à l'échelle nanométrique avec présence d'agrégats rendant compte par conséquent de la formation de nanoparticules. Pour ce qui concerne les métaux, Upadhyay *et al.* ont également développé ce type d'approche [232]. Elle leur a permis en particulier, de mettre en évidence que le rapport  $\alpha_{abl}$  entre l'énergie nécessaire à l'ablation  $E_{abl}$  et l'énergie de

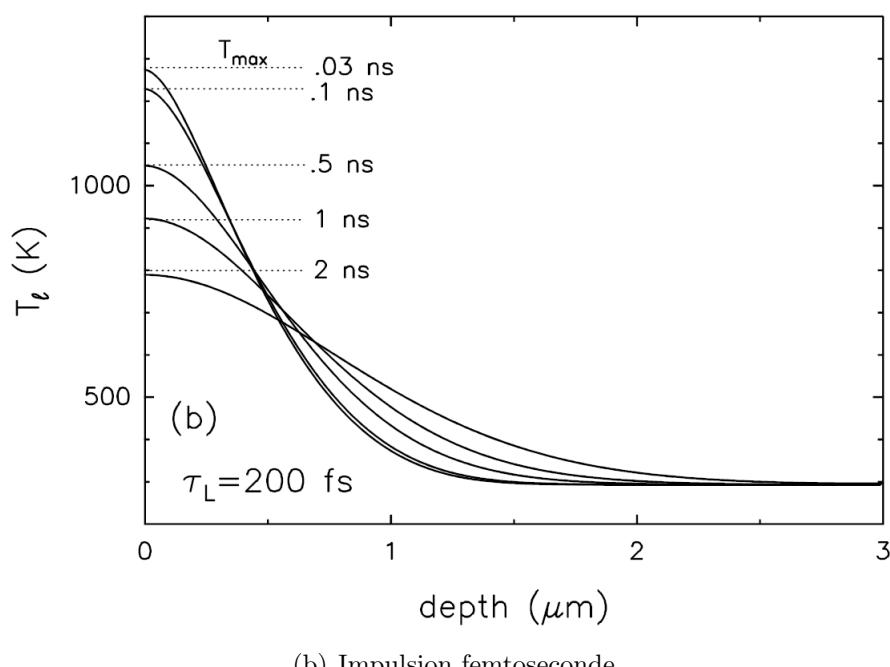
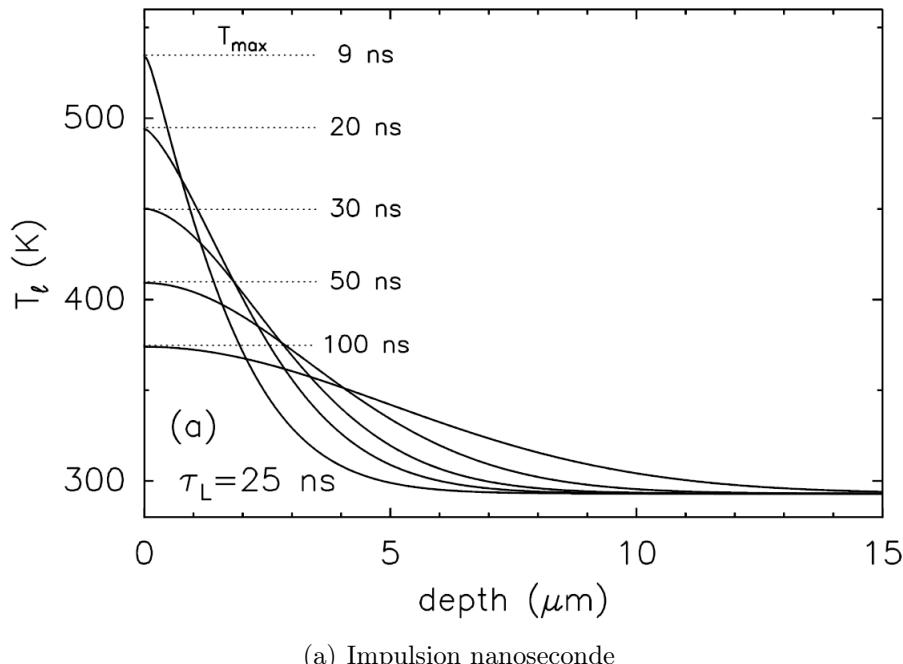


FIGURE 1.5.3 – Évolution temporelle du champ de température calculée par une approche 2T dans un échantillon d'or sous une impulsion (a) nanoseconde ( $\tau = 25$  ns) ou (b) femtoseconde ( $\tau = 200$  fs) dans les mêmes conditions de fluence à  $130 \text{ mJ cm}^{-2}$  par Wellershoff *et al.* [246].

cohésion du matériau  $E_{coh}$  vaut :

$$\alpha_{abl} = \frac{E_{abl}}{E_{coh}} \approx 0,3 \quad \text{à} \quad 30\% \quad \text{près} \quad (1.5.1)$$

pour les métaux étudiés. On rappelle que l'énergie de cohésion du matériau est l'énergie moyenne minimale d'un atome interdisant tout état condensé. Elle vaut 3,39 eV pour l'aluminium.

La valeur du rapport  $\alpha_{abl}$  donnée par l'équation (1.5.1) permet d'envisager à terme un traitement commun par dynamique moléculaire de l'ablation de tous les métaux sous impulsion femtoseconde.

Pour terminer, citons les travaux de Margetic *et al.* [151] développant des modèles reproduisant l'expansion du plasma obtenu sur des cibles de cuivre sous atmosphère d'argon. La dynamique en question est très classique et ressemble de près à ce qui peut être observé dans le cas d'impulsions nanosecondes. Ainsi, on peut conclure que les différences entre plasmas produits par impulsions femtosecondes et nanosecondes tiennent essentiellement au mode de production employé : une étude théorique s'appuyant sur l'utilisation d'un modèle collisionnel-radiatif dans le cas femtoseconde est donc tout à fait envisageable.

\* \* \*

Ce chapitre consacré aux principales caractéristiques de l'interaction laser-matière dans le cas des impulsions femtosecondes clôt cette partie introductive. La partie suivante décrit les modèles collisionnels-radiatifs présentés dans la table 1.4.3.



# Deuxième partie

## Modélisation



# Chapitre 2.1

## Modèle découplé A

### 2.1.1 Cas test envisagé

Le matériau test étudié au cours de ces travaux est composé d'aluminium. Il est placé sous vide et éclairé par un faisceau laser de longueur d'onde  $\lambda_{las} = 532$  nm, d'énergie  $E = 65$  mJ et d'une durée d'impulsion à mi-hauteur  $\tau=4$  ns. L'évolution temporelle de la densité de flux laser est modélisée par une fonction gaussienne donnée par l'équation (1.2.1) :

$$\varphi_{las}(t) = \varphi_{las}^{max} \exp \left[ - \left( 2 \frac{t - 1,2\tau}{\tau} \right)^2 \right] \quad (2.1.1)$$

où le facteur 1,2 a été introduit pour permettre un léger décalage temporel de l'impulsion tel que la densité de flux laser au temps  $t=0$  s soit inférieure à 1 % de sa valeur maximale.

La tache de focalisation apparente du faisceau laser sur la cible (cf. schéma 2.1.1) présente un diamètre  $d = 1$  mm. En première approximation, la valeur de la densité de flux maximale de l'impulsion laser peut être approximée en considérant le diamètre apparent  $d$  et non pas  $\omega_0$ , le waist après focalisation. Dès lors, la densité de flux maximale peut être estimée par  $\varphi_{las}^{max} = \frac{4E}{\pi d^2 \tau}$ . Dans le cadre des conditions du cas-test, elle vaut  $2.10^{13}$  W m<sup>-2</sup> ce qui correspond à une fluence moyenne définie par l'équation (1.2.6) de 4 J cm<sup>-2</sup> et une fluence maximale de 8 J cm<sup>-2</sup>. Cette fluence maximale est légèrement supérieure au seuil donné dans la section 1.1. Ce seuil ne devant pas être considéré au sens strict en raison des incertitudes expérimentales, nous pouvons considérer que cette fluence maximale est suffisamment faible pour ne pas induire de phénomènes multiphasiques.

Le modèle A est basé sur l'hypothèse que l'interaction laser/matière est limitée à une évolution de la température de surface  $T_S$  qui suit l'évolution de la densité de flux laser éclairant l'échantillon. De plus, nous supposons que la surface de la cible est initialement à l'état liquide et que sa température est égale à celle de fusion de l'aluminium  $T_f \approx 950$  K. Avec ces hypothèses, l'évolution temporelle de la surface de l'échantillon est donc modélisée par :

$$T_S(t) = (T_S^{max} - T_f) \exp \left[ - \left( 2 \frac{t - 1,2\tau}{\tau} \right)^2 \right] + T_f \quad (2.1.2)$$

Dans le cadre du cas-test, nous avons choisi  $T_S^{max} = 2900$  K comme une valeur intermédiaire entre  $T_f$  et la température critique. L'influence de  $T_S^{max}$  sur les caractéristiques du plasma sera étudiée dans la section 3.1.2.

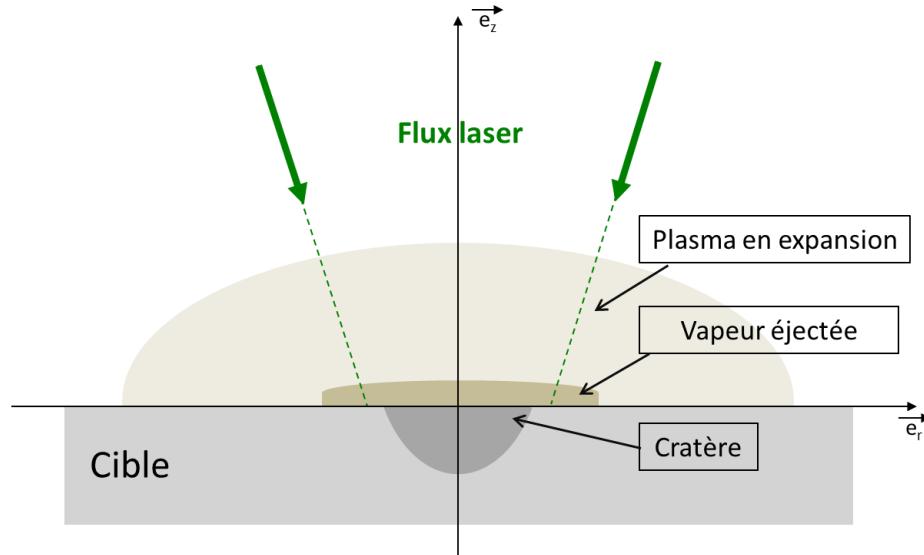


FIGURE 2.1.1 – Schéma du dispositif. Interaction laser/matière.

Le modèle A a été élaboré afin d'étudier spécifiquement la phase plasma pendant et immédiatement après l'impulsion laser. L'hydrodynamique du plasma en expansion a donc été très fortement simplifiée : nous avons supposé que l'évolution de l'épaisseur du plasma est simplement pilotée par la vitesse d'agitation thermique des lourds. Ainsi l'équation :

$$\frac{dZ}{dt} = \sqrt{\frac{8k_B T_A}{\pi m_A}} \quad (2.1.3)$$

permet de caractériser la taille de la mono-couche de plasma en interaction avec l'impulsion laser.

Le tableau 2.1.1 récapitule les conditions prises en compte dans ce cas-test.

## 2.1.2 Diagramme énergétique adopté

Le diagramme énergétique complet de l'aluminium répertorié dans la bibliothèque du NIST [234] contient plus de 600 niveaux. La prise en compte de tous ces niveaux n'a pas d'intérêt pour notre modèle : il est préférable de regrouper les niveaux en supposant qu'ils sont bien couplés. Plus précisément, le regroupement est effectué selon la proximité énergétique des niveaux d'énergie. La température caractéristique la plus faible du plasma est celle correspondant au point de fusion de l'aluminium ( $T_f \approx 950$  K). Des niveaux ayant une différence d'énergie inférieure à  $k_B T_f$  soit  $8,19 \cdot 10^{-2}$  eV peuvent donc être considérés systématiquement en équilibre de Boltzmann<sup>1</sup>.

1. Seul le premier niveau excité de l'atome d'aluminium échappe à cette règle de manière à ce que le niveau fondamental ait une énergie nulle.

Matériau	Type de modèle	Impulsion laser	Paramètres d'entrée
Aluminium	0D	$\lambda_{las} = 532 \text{ nm}$ $\tau = 4 \text{ ns}$	$\varphi_{las}^{max} = 2.10^{13} \text{ W m}^{-2}$ $T_S^{max} = 2900 \text{ K}$

TABLE 2.1.1 – Récapitulatif des hypothèses du cas-test (modèle A).

L'énergie  $E_\alpha$  du niveau fictif correspondant est calculée par une moyenne arithmétique sur les états réels ainsi considérés :

$$E_\alpha = \frac{\sum_i E_i g_i}{\sum_i g_i} \quad (2.1.4)$$

où  $E_i$  sont les énergies des composantes de la structure fine  $i$  de poids statistique  $g_i$ . Notons qu'il est important de prendre soin du calcul du poids statistique du niveau fictif comme la somme des poids statistiques des niveaux réels :

$$g_\alpha = \sum_i g_i = \sum_i (2J_i + 1) \quad (2.1.5)$$

Par ailleurs, il n'est pas correct de déduire de l'égalité  $g_\alpha = 2 J_\alpha + 1$  le nombre quantique  $J_\alpha$ . Ainsi, nous avons attribué les nombres quantiques  $l$  et  $J$  (notations plus simple de  $l_\alpha$  et  $J_\alpha$  adoptée dans la suite) à chaque niveau fictif selon la règle suivante. Une fois l'énergie et le poids statistique d'un niveau fictif définis, nous calculons les probabilités de chaque couple  $(l, J)$  des niveaux réels correspondant au niveau fictif en question et nous lui attribuons ce couple de valeur. En cas d'équiprobabilité de plusieurs couples  $(l, J)$ , nous attribuons les caractéristiques quantiques du couple ayant le  $J$  le plus élevé. En cas de nouvelle égalité, c'est le nombre quantique azimutal le plus élevé qui imposera sa valeur.

Ces règles d'attribution sont bien sûr arbitraires et peuvent être sujet à discussion. Il nous a toutefois semblé pertinent de raisonner en termes de probabilité. Remarquons également que l'attribution des nombres quantiques  $l$  et  $J$  n'influencent que très peu le comportement global du plasma. Ces nombres quantiques permettent de caractériser une transition par impact électronique d'un niveau  $\alpha$  à un niveau  $\beta$  (transition optiquement autorisée, interdite pour cause de parité ou interdite pour cause de spin) comme nous le verrons dans la sous-section 2.1.4.g.

Finalement, chaque niveau fictif sera caractérisé par les données suivantes :

- le **numéro du niveau** : c'est le numéro du niveau en considérant le diagramme énergétique des 4 espèces lourdes présentes dans le plasma. Ce numéro vaut 1 pour le fondamental de Al et respectivement 44, 86 et 107 pour les niveaux fondamentaux de  $\text{Al}^+$ ,  $\text{Al}^{2+}$  et  $\text{Al}^{3+}$ , les numéros intermédiaires étant les numéros des niveaux excités de chaque espèce (cf. tableau en annexe A.1)
- l'**énergie du niveau fictif**, l'origine des énergies étant le niveau fondamental de l'aluminium neutre<sup>2</sup>,
- le **poids statistique** du niveau fictif,

2. Les niveaux auto-ionisants étant considérés, l'énergie d'excitation d'une espèce peut être supérieure à l'énergie d'ionisation de l'ion directement supérieur.

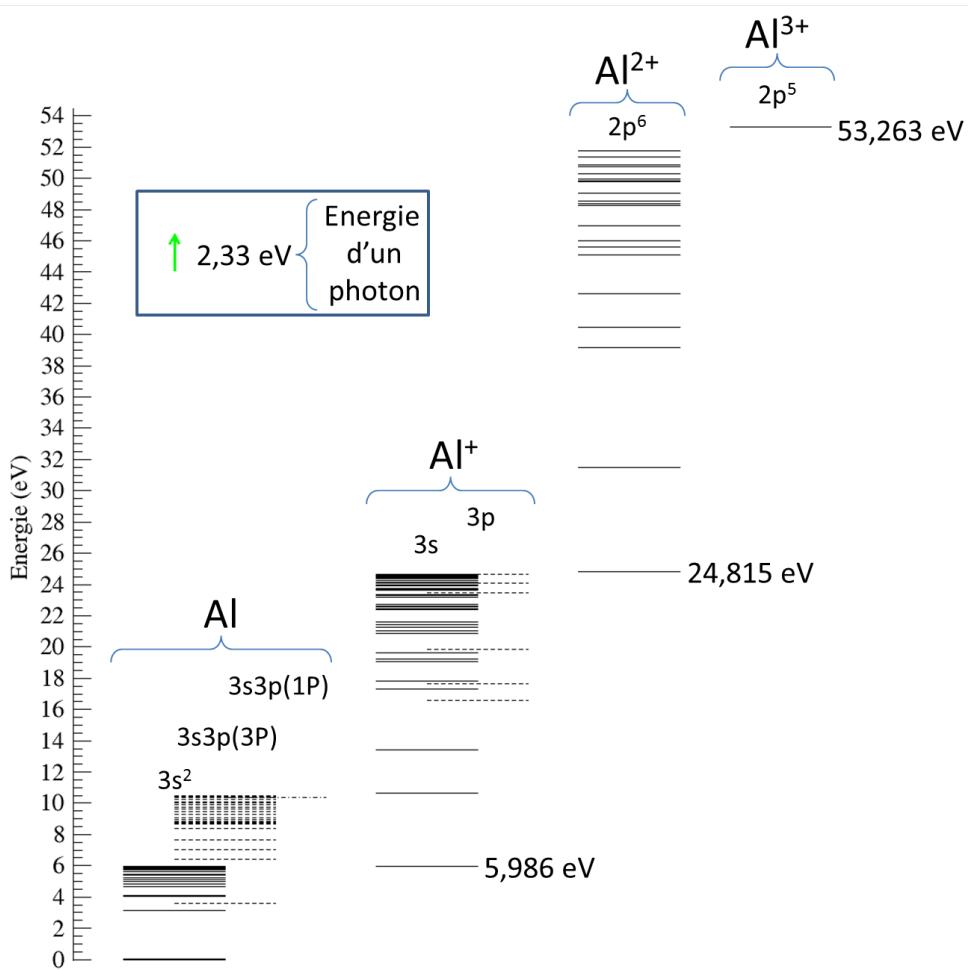


FIGURE 2.1.2 – Diagramme énergétique de l'aluminium compte tenu des regroupements de niveaux effectués pour les différentes configurations de cœur. L'énergie d'un photon à 532 nm est également représentée sur ce diagramme.

- le **nombre quantique azimuthal** correspondant au couple  $(l, J)$  le plus probable et
- le **nombre quantique  $J$**  correspondant également au couple  $(l, J)$  le plus probable.

Le diagramme énergétique de l'aluminium considéré dans le modèle est visible sur la figure 2.1.2

Par ailleurs, notons que le modèle a été conçu pour permettre la description du phénomène pour d'autres éléments que l'aluminium. Bien que ces travaux ne soient pas présentés dans ce mémoire de thèse, l'annexe A inclut également les diagrammes énergétiques des niveaux fictifs du cuivre A.2 et du magnésium A.3.

### 2.1.3 Équations de bilan

L'évolution des espèces distribuées dans les niveaux excités présentés dans le diagramme énergétique de l'annexe A est régie par des équations de bilan. Les électrons sont supposés à l'équilibre de Maxwell-Boltzmann. Cette hypothèse permet d'écrire la

variation d'énergie du gaz électronique à la température  $T_e$  sous la forme [244] :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( n_e \frac{3}{2} k_B T_e \right) = P_{ee} - \operatorname{div} (\vec{J}_e + \vec{\varphi}_{ee}) \quad (2.1.6)$$

où  $P_{ee}$  est le terme de production volumique d'énergie au sein du gaz électronique résultant des processus collisionnels et radiatifs électrons/lourds et électrons/photon. Détails dans la section 2.1.4.  $\vec{J}_e$  figure le vecteur densité de flux d'énergie résultant des phénomènes de diffusion et  $\vec{\varphi}_{ee}$  celui résultant de l'évaporation à l'interface. Nous avons vu précédemment que le plasma est modélisé sous la forme d'une couche uniforme d'épaisseur variable se développant dans le vide. Par conséquent :

- $\vec{J}_e = \vec{0}$  : aucun phénomène de diffusion ne se produit,
- $\operatorname{div} (\vec{\varphi}_{ee}) = \frac{\varphi_{ee}[Z(t)] - \varphi_{ee}(0)}{Z(t)} = -\frac{\varphi_{ee}}{Z(t)}$
- $\frac{\partial}{\partial t} \left( n_e \frac{3}{2} k_B T_e \right) = \frac{d}{dt} \left( n_e \frac{3}{2} k_B T_e \right)$

Dans le cadre de ces hypothèses, l'équation (2.1.6) prend la forme suivante :

$$\frac{d}{dt} \left( n_e \frac{3}{2} k_B T_e \right) = P_{ee} + \frac{\varphi_{ee}}{Z(t)} \quad (2.1.7)$$

Les espèces lourdes sont considérées comme un gaz à la température  $T_A$ . Il est nécessaire de prendre en compte dans l'énergie des lourds non seulement le stockage dans le mode de translation mais également le stockage dans l'excitation électronique. Dès lors, l'équation de bilan d'énergie s'écrit :

$$\frac{d}{dt} \left( \frac{3}{2} k_B T_A \sum_{niv} [Al_{niv}] + \sum_{niv} \{E_{niv} [Al_{niv}]\} \right) = P_{eA} + \frac{\varphi_{eA}}{Z(t)} \quad (2.1.8)$$

où  $P_{eA}$  et  $\varphi_{eA}$  sont les termes équivalents à  $P_{ee}$  et  $\varphi_{ee}$  appliqués aux espèces lourdes. L'indice "niv" indique que les sommes doivent être étendues à tous les niveaux fictifs listés en annexe A.

L'évolution des énergies volumiques étant peu propice à la comparaison entre notre modèle et ceux de la littérature, nous avons préféré exprimer les variations des températures  $T_e$  et  $T_A$  afin d'identifier les contributions les plus importantes. De plus, les processus collisionnels et radiatifs considérés dans ce modèle sont fonctions de  $T_e$  et/ou  $T_A$ . Ainsi, nous écrivons :

$$\frac{dT_e}{dt} = \frac{1}{\frac{3}{2} k_B n_e} \left( P_{ee} + \frac{\varphi_{ee}}{Z(t)} - \frac{3}{2} k_B T_e \frac{dn_e}{dt} \right) \quad (2.1.9)$$

et

$$\frac{dT_A}{dt} = \frac{1}{\frac{3}{2} k_B \sum_{niv} [Al_{niv}]} \left( P_{eA} + \frac{\varphi_{eA}}{Z(t)} - \frac{3}{2} k_B T_A \sum_{niv} \frac{d[Al_{niv}]}{dt} - \sum_{niv} \left\{ E_{niv} \frac{d[Al_{niv}]}{dt} \right\} \right) \quad (2.1.10)$$

Ces deux équations sont légèrement modifiées pour permettre la caractérisation des processus pris en compte en posant les termes listés dans la table 2.1.2 (exprimés en  $\text{K s}^{-1}$ ). Les termes  $\Theta_A(\text{PCR})$  et  $\Theta_e(\text{PCR})$  sont détaillés dans la section 2.1.4.

Influence sur la température	des lourds ( $T_A$ )	des électrons ( $T_e$ )
des différents processus collisionnels radiatifs	$\Theta_A(PCR) = \frac{P_{eA}}{\frac{3}{2}k_B \sum_{niv} [Al_{niv}]}$	$\Theta_e(PCR) = \frac{P_{ee}}{\frac{3}{2}k_B n_e}$
de l'évaporation	$\Theta_A(\varphi) = \frac{1}{\frac{3}{2}k_B \sum_{niv} [Al_{niv}]} \frac{\varphi_{eA}}{Z(t)}$	$\Theta_e(\varphi) = \frac{1}{\frac{3}{2}k_B n_e} \frac{\varphi_{ee}}{Z(t)}$
du stockage d'énergie de translation dû aux variations de densités	$\Theta_A(u_1) = -\frac{T_A}{\sum_{niv} [Al_{niv}]} \frac{d[Al_{niv}]}{dt}$	$\Theta_e(u_1) = -\frac{T_e}{n_e} \frac{dn_e}{dt}$
du stockage d'énergie d'excitation et d'ionisation résultant des variations de densités	$\Theta_A(u_2) = -\frac{1}{\frac{3}{2}k_B \sum_{niv} [Al_{niv}]} E_{niv} \frac{d[Al_{niv}]}{dt}$	

TABLE 2.1.2 – Expressions des termes intervenant dans les équations (2.1.9) et (2.1.10).

Les équations (2.1.9) et (2.1.10) s'écrivent en définitive :

$$\frac{dT_e}{dt} = \Theta_e(PCR) + \Theta_e(\varphi) + \Theta_e(u_1) \quad (2.1.11)$$

et

$$\frac{dT_A}{dt} = \Theta_A(PCR) + \Theta_A(\varphi) + \sum_{niv} \Theta_A(u_1) + \sum_{niv} \Theta_A(u_2) \quad (2.1.12)$$

Les processus élémentaires sont décrits dans la section suivante et chaque contribution aux équations (2.1.9) et (2.1.10) est ainsi explicitée.

## 2.1.4 Processus d'interaction

### 2.1.4.a L'évaporation ( $\varphi$ )

Temporellement, le premier processus se produisant lors de la création d'un plasma induit par laser est l'évaporation depuis la cible. Les éléments bibliographiques de la partie 1 ont montré que l'évaporation est pilotée par la pression de vapeur saturante notée  $P_{vap}$  à la température de la surface  $T_S$ . La matière passant en phase gazeuse a de plus une température égale à la température de surface  $T_S$ . L'évaporation est ainsi correctement modélisée par la loi de Herz-Knudsen donnant la densité de flux de particules  $\vec{\varphi}_N$  sous la

forme :

$$\vec{\varphi}_N = \frac{P_{vap}}{\sqrt{2\pi m_A k_B T_S}} \vec{e}_z \quad (2.1.13)$$

et la densité de flux d'énergie  $\vec{\varphi}_e$  :

$$\vec{\varphi}_e = \frac{P_{vap}}{\sqrt{2\pi m_A k_B T_S}} 2k_B T_S \vec{e}_z \quad (2.1.14)$$

La masse des atomes d'aluminium est notée  $m_A$ .

La pression de vapeur saturante dépend de la température d'une manière complexe. Pour l'élaboration de ce modèle, les valeurs de la pression de vapeur saturante sont calculées à partir de l'équation :

$$\log P_{vap} = 5,006 + A + \frac{B}{T} \quad (2.1.15)$$

où  $A = 6,044$  et  $B = -16364$  K sont des constantes. L'expression (2.1.15) résulte d'une discussion concernant des résultats expérimentaux obtenus par Alcock *et al.* [4] et des considérations sur le point critique. Cette discussion est développée dans la sous-section 2.2.2.b.

Par ailleurs, on suppose que l'évaporation permet le passage en phase gazeuse d'atomes d'aluminium sur le niveau fondamental  $Al_1$  et sur le premier état excité  $Al_2$  (d'énergie  $E_2 = 0,014$  eV) ainsi que d'ions  $Al_1^+$  sur le niveau fondamental et d'électrons libres. Cette hypothèse résulte des propriétés de la couche de Knudsen : à l'interface liquide/gaz, l'équilibre est respecté. Il est ainsi possible de calculer la fraction de chaque espèce constituant le gaz au voisinage de l'interface. En effet :

- la vapeur produite étant assimilable à un gaz parfait à la pression de vapeur saturante et à la température de surface, on a :

$$P_{vap} = (n_e + [Al_1] + [Al_2] + [Al_1^+]) k_B T_S \quad (2.1.16)$$

- les espèces évaporées sont à l'équilibre thermodynamique, d'où :

$$\frac{[Al_2]}{[Al_1]} = \frac{g_2}{g_1} \exp\left(-\frac{E_2}{k_B T_S}\right) \quad (2.1.17)$$

$$\frac{[Al_1^+] n_e}{[Al_1]} = \frac{2g_1^+}{g_1} \left(\frac{2\pi m_e k_B T_S}{h^2}\right)^{3/2} \exp\left(-\frac{E_1^+}{k_B T_S}\right) \quad (2.1.18)$$

où  $g_1^+$  est le poids statistique du niveau fondamental de  $Al_1^+$ ,  $E_2$  et  $E_1^+$  sont respectivement les énergies d'excitation du premier état excité et l'énergie d'ionisation de l'aluminium.

- l'électroneutralité est respectée, d'où :

$$[Al_1^+] = n_e \quad (2.1.19)$$

Les équations précédentes mènent au polynôme du second degré :

$$\left\{1 + \frac{g_2}{g_1} \exp\left(\frac{-E_2}{k_B T_S}\right)\right\} n_e^2 + \frac{2g_1^+}{g_1} \left(\frac{2\pi m_e k_B T_S}{h^2}\right)^{3/2} \exp\left(\frac{-E_1^+}{k_B T_S}\right) \left(2n_e - \frac{P_{vap}}{k_B T_S}\right) = 0 \quad (2.1.20)$$

qui permet de déterminer la densité électronique :

$$n_e = \frac{\sqrt{1 + \left\{ 1 + \frac{g_2}{g_1} \exp\left(\frac{-E_2}{k_B T_S}\right) \right\} \frac{g_1}{2g_1^+} \left( \frac{h^2}{2\pi m_e k_B T_S} \right)^{3/2} \exp\left(\frac{E_1^+}{k_B T_S}\right) \frac{P_{vap}}{k_B T_S} - 1}}{1 + \frac{g_2}{g_1} \exp\left(\frac{-E_2}{k_B T_S}\right)} \times 2 \frac{g_1^+}{g_1} \left( \frac{2\pi m_e k_B T_S}{h^2} \right)^{3/2} \exp\left(\frac{-E_1^+}{k_B T_S}\right) \quad (2.1.21)$$

On peut définir le rapport  $f_{evap}$  :

$$f_{evap} = \frac{n_e}{n_e + [Al_1] + [Al_2] + [Al_1^+]} = \left[ 1 + \sqrt{1 + \left\{ 1 + \frac{g_2}{g_1} \exp\left(\frac{-E_2}{k_B T_S}\right) \right\} \frac{g_1}{2g_1^+} \left( \frac{h^2}{2\pi m_e k_B T_S} \right)^{3/2} \exp\left(\frac{E_1^+}{k_B T_S}\right) \frac{P_{vap}}{k_B T_S}} \right]^{-1} \quad (2.1.22)$$

qui permet de déterminer la contribution de chaque espèce évaporée et d'exprimer les densités de flux d'énergie dues à l'évaporation pour les lourds  $\varphi_{eA}$  et les électrons  $\varphi_{ee}$  intervenant dans les équations de bilan (cf. section 2.1.3) :

$$\varphi_{eA} = \varphi_e (1 - f_{evap}) \quad (2.1.23)$$

$$\varphi_{ee} = \varphi_e f_{evap} \quad (2.1.24)$$

Électrons, ions et neutres sur le fondamental et le premier état excité ayant des densités différentes selon les valeurs de  $P_{vap}$  et  $T_S$ , leur densité de flux est donc différente. Ainsi :

- pour les électrons et pour les ions  $Al^+$  sur le niveau fondamental elle s'écrit :

$$\vec{\varphi}_{elec} = \vec{\varphi}_{Al_1^+} = \vec{\varphi}_N f_{evap} \quad (2.1.25)$$

- pour les atomes d'aluminium sur le niveau fondamental :

$$\vec{\varphi}_{Al_1} = \vec{\varphi}_N (1 - 2f_{evap}) \frac{g_1}{g_1 + g_2} \quad (2.1.26)$$

- et pour les atomes d'aluminium sur le premier niveau excité :

$$\vec{\varphi}_{Al_2} = \vec{\varphi}_N (1 - 2f_{evap}) \frac{g_2}{g_1 + g_2} \quad (2.1.27)$$

Ces trois équations permettent d'exprimer les variations de densités de population en  $m^{-3} s^{-1}$  pour les électrons  $\Xi_e (\varphi)$ , les atomes d'aluminium sur le niveau fondamental  $\Xi_{Al_1} (\varphi)$  et le premier niveau excité  $\Xi_{Al_2} (\varphi)$  et pour le niveau fondamental de l'ion  $Al^+$   $\Xi_{Al_1^+} (\varphi)$  de la manière suivante :

$$\Xi_e (\varphi) = \frac{dn_e}{dt} = \frac{\|\vec{\varphi}_N\|}{Z(t)} f_{evap} \quad (2.1.28)$$

$$\Xi_{Al_1}(\varphi) = \frac{d[Al_1]}{dt} = \frac{\|\vec{\varphi}_N\|}{Z(t)} (1 - 2f_{evap}) \frac{g_1}{g_1 + g_2} \quad (2.1.29)$$

$$\Xi_{Al_2}(\varphi) = \frac{d[Al_2]}{dt} = \frac{\|\vec{\varphi}_N\|}{Z(t)} (1 - 2f_{evap}) \frac{g_2}{g_1 + g_2} \quad (2.1.30)$$

$$\Xi_{Al_1^+}(\varphi) = \frac{d[Al_1^+]}{dt} = \frac{\|\vec{\varphi}_N\|}{Z(t)} f_{evap} \quad (2.1.31)$$

Comme nous l'avons vu dans la section 2.1.3, nous exprimons les termes  $\Theta_A(\varphi)$  et  $\Theta_e(\varphi)$  afin de caractériser l'influence de l'évaporation sur les variations des températures  $T_A$  et  $T_e$  comme suit :

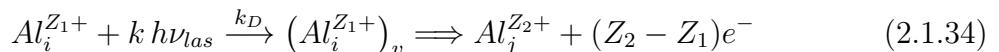
$$\Theta_A(\varphi) = \frac{1}{\frac{3}{2}k_B \sum_{niv} [Al_{niv}]} \frac{\varphi_{eA}}{Z(t)} \quad (2.1.32)$$

$$\Theta_e(\varphi) = \frac{1}{\frac{3}{2}k_B n_e} \frac{\varphi_{ee}}{Z(t)} \quad (2.1.33)$$

L'évaporation permet la formation d'un gaz de particules, via la couche de Knudsen. Le gaz interagit avec l'impulsion laser au travers de plusieurs processus décrits dans les paragraphes suivants.

## 2.1.4.b L'ionisation multiphotonique (MPI)

Selon la théorie quantique de l'ionisation multiphotonique, plusieurs photons peuvent interagir avec une particule lourde sur un temps très court et conduire à l'ionisation de cette particule par excitation progressive d'états virtuels selon l'équation :



Dans cette équation,  $Al_i^{Z_1+}$  représente la particule de charge  $Z_1+$  sur le niveau d'énergie  $i$  et  $k$  correspond au nombre de photons d'énergie  $h\nu_{las}$  nécessaires pour atteindre l'état virtuel  $(Al_i^{Z_1+})_v$ . Ce niveau virtuel dont la durée de vie est très courte conduit à la formation d'un ion de charge  $Z_2+$  excité sur le niveau  $j$  noté  $Al_j^{Z_2+}$ .

La durée de vie d'un état virtuellement excité par un photon est déduite de l'inégalité de Heisenberg et vaut  $\Delta t_1 = \frac{1}{4\pi\nu_{las}}$ , soit  $1,41 \cdot 10^{-16}$  s dans notre cas<sup>3</sup>. Si durant ce laps de temps un second photon entre en interaction avec le lourd, le niveau d'énergie correspondant aura une durée de vie de  $\Delta t_2 = \frac{1}{4\pi 2\nu_{las}}$ . Ainsi, la durée de vie maximale de

l'état virtuel considéré lors de l'interaction d'un lourd avec  $k$  photons vaut  $\Delta t_k = \frac{1}{4\pi k\nu_{las}}$  autrement dit  $\frac{\Delta t_1}{k}$ . Par ailleurs, l'énergie de l'état virtuel atteint lors de l'interaction avec  $k$  photons est  $k h\nu_{las} + E_i$  où  $E_i$  est l'énergie du niveau de départ.

Comme nous l'avons mis en évidence dans la section 1.3, l'ionisation multiphotonique intervient particulièrement lorsque la densité de flux de photons est élevée. Une analyse

---

3. On rappelle que  $\lambda_{las} = 532$  nm : ainsi  $\nu_{las} = 5,64 \cdot 10^{14}$  Hz et  $h\nu_{las} = 2,33$  eV

de son rôle a été faite dans le chapitre 1.1. La section 3.1.2 montrera que ce rôle est effectivement important. Par conséquent, il est nécessaire d'apporter un soin particulier aux sections efficaces rendant compte de ce processus. Cependant, à notre connaissance, il n'existe pas de jeu de sections efficaces d'ionisation multiphotonique spécifique à l'aluminium. Néanmoins des modèles hydrogénoides présentant une précision suffisante pour ce type d'atome existent : ces modèles ont été repris ici bien que l'aluminium ne soit pas hydrogénoides et nous n'oublierons pas de discuter cette hypothèse par la suite.

Le nombre de photons nécessaires pour que la particule soit ionisée depuis un niveau de départ  $i$  quelconque sur un niveau  $j$  de l'ion directement supérieur est calculé compte tenu de l'écart énergétique par :  $k = \text{Int} \left( \frac{E_j - E_i}{h\nu_{las}} + 1 \right)$ , où  $\text{Int}$  signifie que l'on considère la partie entière. Dans ce modèle, nous supposons que le nombre de photons pouvant interagir avec une particule est trop faible pour conduire à une ionisation multiple<sup>4</sup>. Ainsi, dans l'équation (2.1.34), la différence entre les charges  $Z_2 - Z_1$  est égale à l'unité.

La forme utilisée pour la section efficace d'ionisation multiphotonique  $\sigma_{MPI}^{(k)}$  (exprimée en  $\text{m}^{2k} \text{ W}^{-k} \text{ s}^{-1}$ ) est celle de Müsing *et al.* [170] :

$$\sigma_{MPI}^{(k)} = \frac{\sigma_1^k}{(k-1)!\nu_{las}^{(k-1)}(h\nu_{las})^k} \quad (2.1.35)$$

Cette forme est applicable aux états fondamentaux et excités. Elle est basée sur un modèle hydrogénoidal dont la forme fait directement intervenir le nombre  $k$  de photons impliqués dans le processus. Par ailleurs, elle est fonction de la section efficace du processus à un photon<sup>5</sup>  $\sigma_1$  dont la valeur est  $10^{-20} \text{ m}^2$  selon Grey Morgan [87] ou  $10^{-22} \text{ m}^2$  selon Gamal *et al.* [77]. Le cas-test développé dans la section 2.1.1 prend en considération la valeur de  $\sigma_1$  proposée par Grey Morgan. Cependant, l'influence de  $\sigma_1$  sera étudiée dans la sous-section 3.1.3.a.

A partir de cette section efficace, les taux direct (2.1.36) et inverse (2.1.37) de la réaction (2.1.34) sont déterminés :

$$k_{D,(MPI)} = \sigma_{MPI}^{(k)} \varphi_{las}^k \quad (2.1.36)$$

$$k_{I,(MPI)} = k_{D,(MPI)} \frac{g_i}{g_j} \frac{h^3 e^{\frac{E_j - E_i}{k_B T_e}}}{2(2\pi m_e k_B T_e)^{3/2}} \quad (2.1.37)$$

où nous rappelons que  $\varphi_{las}$  est la densité de flux d'énergie du laser et  $g_i$  et  $g_j$  les poids statistiques des niveaux  $i$  et  $j$  considérés pour la transition.

Ces taux permettent de calculer la vitesse de réaction (exprimée en  $\text{m}^{-3} \text{ s}^{-1}$ ) de chacune des espèces impliquées dans la réaction, c'est-à-dire la vitesse à laquelle le niveau fictif de l'espèce considérée est peuplé (ou dépeuplé) compte tenu du processus d'interaction. Ainsi, la vitesse de réaction de  $\text{Al}_i^{(Z-1)+}$  notée  $\Xi_{\text{Al}_i^{(Z-1)+}}(MPI)$ , s'écrit :

$$\Xi_{\text{Al}_i^{(Z-1)+}}(MPI) = \frac{d \left[ \text{Al}_i^{(Z-1)+} \right]}{dt} = k_{I,(MPI)} [\text{Al}_j^{Z+}] n_e - k_{D,(MPI)} [\text{Al}_i^{(Z-1)+}] \quad (2.1.38)$$

4. C'est-à-dire les processus entraînant la production de plusieurs électrons.

5. C'est-à-dire le processus de photoionisation.

La vitesse de réaction pour les électrons  $\Xi_e(MPI)$  peut également être écrite :

$$\Xi_e(MPI) = \frac{dn_e}{dt} = k_{D,(MPI)} [Al_i^{(Z-1)+}] - k_{I,(MPI)} [Al_j^{Z+}] n_e \quad (2.1.39)$$

D'autre part, le modèle ne considérant pas les processus pour lesquels l'espèce serait deux fois ionisée, nous avons l'égalité suivante :

$$\Xi_e(MPI) = \Xi_{Al_j^{Z+}}(MPI) \quad (2.1.40)$$

où  $\Xi_{Al_j^{Z+}}(MPI)$  est la vitesse de réaction pour les ions  $Al_j^{Z+}$ .

Il est possible d'en déduire une partie des termes de variation des températures des lourds et électronique  $\Theta_A$  et  $\Theta_e$  vus dans la section 2.1.3. Les contributions de la part de l'ionisation multiphotonique à ces termes de variation pour les espèces lourdes  $\Theta_A(MPI)$  et pour les électrons  $\Theta_e(MPI)$  spécifiquement pour la réaction (2.1.34) sont respectivement :

$$\Theta_A(MPI) = \{E_j - E_i\} \frac{k_{D,(MPI)} [Al_i^{(Z-1)+}] - k_{I,(MPI)} [Al_j^{Z+}] n_e}{\frac{3}{2} k_B \sum_{niv} [Al_{niv}]} \quad (2.1.41)$$

$$\Theta_e(MPI) = \{k h\nu - (E_j - E_i)\} \frac{k_{D,(MPI)} [Al_i^{(Z-1)+}] - k_{I,(MPI)} [Al_j^{Z+}] n_e}{\frac{3}{2} k_B n_e} \quad (2.1.42)$$

L'ionisation multiphotonique n'est pas le seul processus radiatif contribuant à la production d'énergie volumique des électrons : le Bremsstrahlung inverse est lui aussi un processus à prendre en compte lors de la modélisation de plasmas induits par laser comme le chapitre 1.1 l'a montré.

### 2.1.4.c Le Bremsstrahlung inverse (IB)

Le terme Bremsstrahlung est un mot d'origine allemande qui vient de «Strahlung», le rayonnement et «Bremsen» qui se traduit par «freiner». En français, la traduction littérale est donc «rayonnement de freinage». Ce phénomène résulte de l'interaction d'un électron et d'un lourd. Lorsque l'électron considéré se trouve à proximité du lourd, l'interaction électromagnétique (coulombienne dans le cas d'une interaction avec un ion, de type dipôle induit dans le cas d'un neutre) induit un changement de trajectoire et un ralentissement de l'électron. La conservation de l'énergie induit la conversion de l'énergie perdue par l'électron en rayonnement, le lourd ne subissant pas de variation de sa vitesse en raison de sa masse importante<sup>6</sup>.

Le Bremsstrahlung inverse dans le cas d'un plasma induit par laser correspond à l'interaction d'un groupe de photons constituant le rayonnement laser, de fréquence  $\nu_{las}$  et les électrons déjà présents dans le plasma. Un photon est absorbé par l'électron libre d'énergie cinétique initiale  $\varepsilon$ . Après absorption, l'énergie cinétique de l'électron est augmentée d'une valeur égale à celle de l'énergie du photon absorbé  $h\nu_{las}$  telle que :

$$Al_i^{(Z+)} + e^-(\varepsilon) + h\nu_{las} \rightleftharpoons Al_i^{(Z+)} + e^-(\varepsilon') \quad \varepsilon' = \varepsilon + h\nu_{las} \quad (2.1.43)$$

---

6. Dans les modèles théoriques, le référentiel utilisé est celui du lourd. Sa vitesse est donc nécessairement nulle.

Plusieurs travaux ont conduit à l'estimation du coefficient d'absorption par unité de longueur ( $\alpha$  en  $\text{m}^{-1}$ ), de la section efficace ( $\sigma$  en  $\text{m}^2$ ) ou du coefficient de production ( $K$  en  $\text{m}^5$ ) de Bremsstrahlung inverse en considérant les deux contributions électron/ion et électron/neutre [8, 22, 213].

Concernant la contribution du Bremsstrahlung inverse dans le champ d'un neutre, il est nécessaire de prendre garde à la source utilisée. En effet, une erreur concernant l'expression littérale s'est glissée dans la publication de Rosen *et al.* [198] et a été reprise par Thomann *et al.* [225]. Le premier rapport de l'équation (4) de Rosen *et al.* vaut  $\frac{4\pi e^2}{3m_e c^2 \omega}$  dans les unités cgs-uem alors qu'il devrait être égal à  $\frac{4\pi e^2}{3m_e c \omega^2}$  comme c'est le cas dans l'article de Weyl *et al.* [247] et de Dalgarno *et al.* [51]<sup>7</sup>. Ces derniers ont abouti à l'expression du coefficient de production  $K_{IB}^{e,n}$  en résolvant quantiquement le problème de diffusion des photons par les électrons dans le champ d'un neutre en supposant prépondérante l'influence des ondes s et p :

$$K_{IB}^{e,n} = \frac{1}{3m_e c \pi h \nu_{las}^3} \frac{e^2}{4\pi \epsilon_0} \sqrt{\frac{2(h\nu_{las} + \varepsilon)}{m_e}} [(\varepsilon + h\nu_{las}) \sigma_{Al}(\varepsilon) + \varepsilon \sigma_{Al}(\varepsilon + h\nu_{las})] \quad (2.1.44)$$

Dans cette équation,  $\sigma_{Al}(\varepsilon)$  est la section efficace de diffusion élastique. Dans notre modèle, la contribution du Bremsstrahlung inverse dans le champ d'un neutre est calculée en supposant cette section efficace indépendante de l'énergie comme le fait Fabre [65]. Cette hypothèse sera détaillée dans la sous-section 2.1.4.h. Ainsi, la contribution du Bremsstrahlung inverse dans le champ d'un neutre s'écrit :

$$K_{IB}^{e,n} = \frac{1}{3m_e c \pi h \nu_{las}^2} \frac{e^2}{4\pi \epsilon_0} \sqrt{\frac{2(h\nu_{las} + \varepsilon)}{m_e}} \left( 1 + 2 \frac{\varepsilon}{h\nu_{las}} \right) \bar{\sigma}_{Al} \quad (2.1.45)$$

De plus, l'énergie  $\varepsilon$  de l'électron avant l'interaction est ramenée à l'énergie moyenne d'agitation thermique du gaz électronique  $\frac{3}{2}k_B T_e$ .

Concernant le coefficient de production dans le cas du Bremsstrahlung inverse se produisant dans le champ d'un ion, il existe, là aussi, de nombreux travaux [155, 196, 215] dont la plupart des données résultent de ceux de Zel'dovich et Raizer [256]. Ces derniers ont établi une expression dérivant de l'équation de Kramers [133]. C'est cette expression qui a été adoptée dans ce modèle<sup>8</sup> :

$$K_{IB}^{e,i}(Z) = \frac{4}{3} \sqrt{\frac{2\pi}{3m_e k_B T_e}} \frac{Z^2}{hc \nu_{las}^3 m_e} G \frac{e^6}{(4\pi \epsilon_0)^3} \quad (2.1.46)$$

où  $Z$  est la charge de l'ion et  $G$  le facteur de Gaunt qui permet de compenser les hypothèses de Kramers. Dans le cadre de ce modèle, le facteur de Gaunt peut être pris égal à 1,2 (valeur proposée par Rosen *et al.* [196] dans des conditions proches des nôtres).

7. Les travaux de Dalgarno *et al.* sont à la base de l'élaboration de cette expression.

8. L'expression dans l'ouvrage de Zel'dovich et Raizer est donnée en unité cgs-uem, il est donc nécessaire de ramener la charge élémentaire  $e$  dans les unités du système international en divisant par  $\sqrt{4\pi \epsilon_0}$ .

Ainsi, pour un plasma constitué d'électrons, d'atomes Al et d'ions  $\text{Al}^+$ ,  $\text{Al}^{2+}$  et  $\text{Al}^{3+}$ , la section efficace d'absorption vis-à-vis du rayonnement incident relatif à l'ensemble du Bremsstrahlung inverse vaut :

$$\sigma_{IB} = K_{IB}^{e,n}[\text{Al}] + K_{IB}^{e,i}(Z=1)[\text{Al}^+] + K_{IB}^{e,i}(Z=2)[\text{Al}^{2+}] + K_{IB}^{e,i}(Z=3)[\text{Al}^{3+}] \quad (2.1.47)$$

Ce processus inélastique ne produisant pas d'espèce, les coefficients  $K_{IB}^{e,i}$  et  $K_{IB}^{e,n}$  n'induisent pas de vitesse de réaction. L'influence du Bremsstrahlung inverse sur le comportement de la température électronique peut être quantifiée par un terme  $\Theta_e(IB)$  que l'on écrit en fonction de la section efficace  $\sigma_{IB}$  sous la forme :

$$\Theta_e(IB) = \frac{\varphi_{las}}{\frac{3}{2}k_B}\sigma_{IB} \quad (2.1.48)$$

Cependant pour que la prise en compte de l'interaction entre les électrons et l'impulsion laser soit complète, il est nécessaire de considérer le **Bremsstrahlung direct à la longueur d'onde du laser**. Ce phénomène correspond à l'émission d'un photon dans le flux de ceux constituant l'impulsion : il s'agit donc d'émission induite<sup>9</sup>. Le modèle prend en compte les deux contributions dues au Bremsstrahlung (direct et inverse) spécifiquement à la longueur d'onde du laser. Leur influence sur l'évolution de la température électronique s'écrit :

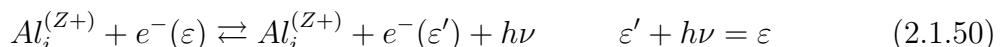
$$\Theta_e(IB) = \frac{\varphi_{las}}{\frac{3}{2}k_B}\sigma_{IB} \left[ 1 - \exp\left(-\frac{h\nu_{las}}{k_B T_e}\right) \right] \quad (2.1.49)$$

Le terme  $\exp\left(-\frac{h\nu_{las}}{k_B T_e}\right)$  correspond à la prise en compte de l'émission stimulée [225, 256] comme nous le montrerons dans la section 4.2.1.

Outre le Bremsstrahlung inverse, le modèle élaboré au cours de nos travaux prend également en compte le Bremsstrahlung thermique.

## 2.1.4.d Le Bremsstrahlung thermique (TB)

Le terme Bremsstrahlung thermique a été adopté ici afin de retranscrire le phénomène physique sous-jacent. Il s'agit de prendre en compte l'effet de l'émission de photons, d'énergie  $h\nu$  quelconque, par les électrons libres dans le champ des lourds. Le Bremsstrahlung thermique est un des phénomène induisant le rayonnement de fond continu du plasma aux temps courts auquel nous nous intéressons au chapitre 4.2. Il est décrit par le processus suivant :



Concernant ce processus, la plupart des auteurs ayant travaillé sur le sujet donnent des valeurs exprimant la contribution du phénomène se produisant dans le champ d'un ion. Ils supposent que celle se produisant dans le champ d'un neutre est un ou deux ordres de grandeurs inférieure et de ce fait, la considèrent comme étant négligeable. Cette hypothèse est justifiée car les sections efficaces de transport de quantité de mouvement électron/neutre sont plus faibles que celles pour le cas électron/ion.

9. Il est important de différencier ce phénomène du Bremsstrahlung thermique, ce dernier se produisant quelle que soit la longueur d'onde.

Par ailleurs, il est à noter que l'équation obtenue par Pakhal *et al.* [178] issue des travaux de Lochte-Holtgreven *et al.* [142] concernant les variations d'énergie par pertes radiatives du gaz électronique comporte une erreur. En effet, il manque un facteur  $\frac{1}{c}$ . Rajoutant ce facteur, l'influence du Bremsstrahlung thermique sur les variations de température du gaz électronique  $\Theta_e(TB)$  sont décrites par l'expression :

$$\Theta_e^{e.i}(TB) = -\frac{16\pi^2}{3\sqrt{3}}\bar{v}_e \frac{1}{\frac{3}{2}k_B m_e h c^3} \frac{e^6}{(4\pi\epsilon_0)^3} G \sum_{Z=1}^3 Z^2 [Al^{Z+}] \quad (2.1.51)$$

qui concorde avec les résultats de Wilbers *et al.* [248] et Tucker *et al.* [230].

Dans cette équation,  $\bar{v}_e = \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi m_e}}$  est la vitesse d'agitation thermique des électrons et  $Z$  est la charge de l'ion considéré. Il est à noter que certains auteurs [117] préfèrent donner l'expression en considérant la charge effective des ions  $Z_{eff}$  par :

$$\Theta_e^{e.i}(TB) = -\frac{16\pi^2}{3\sqrt{3}}\bar{v}_e \frac{1}{\frac{3}{2}k_B m_e h c^3} \frac{e^6}{(4\pi\epsilon_0)^3} G Z_{eff}^2 n_+ \sum_Z Z^2 [Al^{Z+}] \quad (2.1.52)$$

où  $n_+$  est la densité totale en ions et  $Z_{eff}^2 = \frac{\sum_Z Z^2}{\sum_Z [Al^{Z+}]}$  correspond à la charge effective

du plasma. Les deux équations (2.1.51) et (2.1.52) sont donc bien équivalentes.

Cette expression peut également être retrouvée à partir de l'ouvrage de Zel'dovich et Raizer [256]. Afin de disposer d'une forme correcte pour le Bremsstrahlung électron/neutre nous proposons de refaire rapidement un calcul complet. Zel'dovich et Raizer définissent l'énergie rayonnée par seconde sur l'intervalle en fréquence  $d\nu$  par unité de densité de flux d'électrons incidents de vitesse  $v_e$  pour un seul lourd par :

$$dq_\nu = \alpha(v_e)d\nu \quad (2.1.53)$$

exprimée en  $\text{J m}^{-2}$ , en supposant négligeable tout phénomène de réabsorption.

Pour une classe de vitesse des électrons comprise entre  $v_e$  et  $v_e + dv_e$ , l'énergie rayonnée par seconde sur l'intervalle  $d\nu$  vaut donc :

$$d^2\varepsilon_{1,\nu,v_e} = dq_\nu n_e v_e f(v_e) dv_e \quad (2.1.54)$$

exprimée en  $\text{J s}^{-1}$ , pour un seul lourd où la fonction de distribution de la vitesse des électrons est notée  $f(v_e)$ . Considérant  $n$ , l'ensemble des lourds présents par unité de volume, l'énergie rayonnée par seconde (en  $\text{J s}^{-1} \text{m}^{-3}$ ) sur  $d\nu$  par les électrons incidents de vitesse  $v_e$  à  $dv_e$  près vaut donc :

$$d^2\varepsilon_{n,\nu,v_e} = dq_\nu n n_e v_e f(v_e) dv_e \quad (2.1.55)$$

C'est donc la contribution de la part des électrons de vitesse  $v_e$  à  $dv_e$  près au coefficient d'émission volumique par Bremsstrahlung. Ce coefficient volumique exprimé en  $\text{J s}^{-1} \text{m}^{-3}$  vaut au total :

$$\varepsilon(TB) = \int \int d^2\varepsilon_{n,\nu,v_e} = \int \int dq_\nu n n_e v_e f(v_e) dv_e \quad (2.1.56)$$

Ce coefficient d'émission correspond à la production volumique :

$$P_{ee}(TB) = -\varepsilon(TB) \quad (2.1.57)$$

contribuant au terme de production  $P_{ee}$  apparaissant dans l'équation (2.1.9).

On peut en déduire la contribution à la variation par seconde de la température électronique résultant du Bremsstrahlung :

$$\begin{aligned} \Theta_e(TB) &= \frac{P_{ee}(TB)}{\frac{3}{2}k_B n_e} = -\frac{n}{\frac{3}{2}k_B} \int \int dq_\nu v_e f(v_e) dv_e \\ &= -\frac{n}{\frac{3}{2}k_B} \int_{\nu=0}^{+\infty} \int_{v_e=\sqrt{\frac{2h\nu}{m_e}}}^{+\infty} \alpha(v_e) v_e f(v_e) dv_e d\nu \end{aligned} \quad (2.1.58)$$

Le Bremsstrahlung peut se produire par interaction entre les électrons et les neutres ou les ions. Si l'on suppose la réabsorption du rayonnement émis dans les deux cas négligeable, on en déduit :

$$dq_\nu = [\alpha^{e.i}(v_e) + \alpha^{e.n}(v_e)] d\nu \quad (2.1.59)$$

L'équation (2.1.58) peut donc être décomposée en la somme des deux termes  $\Theta_e^{e.i}(TB)$  et  $\Theta_e^{e.n}(TB)$  respectivement fonction de  $\alpha^{e.i}(v_e)$  et  $\alpha^{e.n}(v_e)$  donnés par Zel'dovich et Raizer :

$$\alpha_{e.i}(v_e) = \frac{32\pi^2}{3\sqrt{3}} \frac{Z^2}{m_e^2 c^3 v_e^2} \left( \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^3 \quad (2.1.60)$$

$$\alpha_{e.n}(v_e) = \frac{8}{3} \frac{v_e^2}{c^3} \sigma_{tr} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \quad (2.1.61)$$

où  $\sigma_{tr}$  est une section efficace moyenne de transport de quantité de mouvement peu différente de la section efficace moyenne de collision élastique électron/lourd  $\bar{\sigma}_{Al}$ .

La première forme permet d'obtenir l'équation (2.1.51) en supposant  $f(v_e)$  maxwellienne et en faisant intervenir le facteur de Gaunt G.

La seconde permet de déduire la contribution du Bremsstrahlung électron/neutre sous la forme :

$$\Theta_e^{e.n}(TB) = -\frac{64}{3\sqrt{\pi}} [Al] \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \bar{\sigma}_{Al} \frac{T_e}{hc^3} \left( \frac{2k_B T_e}{m_e} \right)^{3/2} \quad (2.1.62)$$

Cette forme, que Zel'dovich et Raizer ne calculent pas, permet de déterminer la contribution du Bremsstrahlung électron/neutre ou coefficient d'émission volumique. La forme obtenue diffère de celle présentée par Pakhal *et al.* [178] : aucune comparaison ne peut être réalisée, la forme qu'ils présentent étant mal dimensionnée.

Wilbers *et al.* [248] utilisent l'expression due à Cabannes et Chapelle [243] du coefficient d'émission volumique dû au Bremsstrahlung thermique électron/neutre pour une longueur d'onde  $\lambda$ . L'intégrale sur le spectre de cette expression permet d'obtenir une forme de  $\Theta_e^{e.n}$  semblable à l'équation (2.1.62).

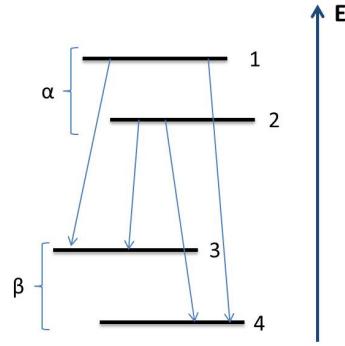


FIGURE 2.1.3 – Schéma d'émission spontanée à quatre niveaux réels et deux niveaux fictifs.

Finalement, la forme adoptée dans le cadre de ce modèle et considérant les deux contributions électron/neutre et électron/ion s'écrit :

$$\Theta_e(TB) = \frac{32}{3m_ehc^3} \bar{v}_e \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \left( [Al] \bar{\sigma}_{Al} 2k_B T_e + \frac{\pi^2}{3\sqrt{3}k_B} G \frac{e^4}{(4\pi\epsilon_0)^2} \sum_Z Z^2 [Al^{Z+}] \right) \quad (2.1.63)$$

Le Bremsstrahlung électron/neutre est difficile à mettre en évidence. On peut citer les articles de Taylor et Caledonia portant sur des gaz rares [222] et N<sub>2</sub>, N et O [223]. Cette difficulté résulte des faibles valeurs de  $\Theta_e^{e,n}$  face à  $\Theta_e^{e,i}$  dans le cas général. Nous avons néanmoins tenu compte de la contribution électron/neutre dans les modèles présentés dans ce mémoire.

Outre l'ionisation multiphotonique, le Bremsstrahlung inverse et le Bremsstrahlung thermique, le modèle développé prend également en compte l'émission spontanée.

#### 2.1.4.e L'émission spontanée (SE)

L'émission spontanée résulte de la désexcitation d'un lourd d'un niveau *j* de haute énergie vers un niveau *i* de plus basse énergie selon :

$$Al_j^{(Z+)} \rightarrow Al_i^{(Z+)} + h\nu \quad h\nu = E_j - E_i \quad (2.1.64)$$

du fait de l'instabilité propre de l'état excité *j*.

Pour prendre ce phénomène en compte, il est nécessaire de connaître les coefficients d'Einstein  $A_{ji}$  (exprimés en s<sup>-1</sup>). Ces coefficients sont issus des bases de données du NIST [235], de Kurucz [237] et de Atomic-Line-List [238] qui regroupe une partie des données du NIST et d'autres données. Ces trois bases permettent de disposer d'un ensemble de plusieurs centaines de probabilités de transition entre des niveaux réels. Les probabilités d'émission spontanée équivalentes (notées  $A_{ji}^*$ ) sont calculées à partir des précédentes du fait du regroupement en niveaux fictifs auquel nous avons procédé.

Supposons un groupe de quatre niveaux d'énergies distinctes comme le montre la figure 2.1.3. Si le coefficient d'Einstein pour la transition entre les niveaux fictifs  $\alpha$  et  $\beta$  existe, alors :

$$\frac{d[\alpha]}{dt} = -A_{\alpha\beta}^*[\alpha] \quad (2.1.65)$$

Or le niveau virtuel  $\alpha$  correspond à l'ensemble des niveaux 1 et 2 de sorte que :

$$\frac{d[\alpha]}{dt} = \frac{d[1]}{dt} + \frac{d[2]}{dt} = \left\{ - (A_{13} + A_{14}) \frac{[1]}{[1] + [2]} - (A_{23} + A_{24}) \frac{[2]}{[1] + [2]} \right\} ([1] + [2]) \quad (2.1.66)$$

Ce qui aboutit à l'expression de la probabilité d'émission spontanée équivalente :

$$A_{\alpha\beta}^* = - (A_{13} + A_{14}) \frac{[1]}{[1] + [2]} - (A_{23} + A_{24}) \frac{[2]}{[1] + [2]} \quad (2.1.67)$$

Cette expression peut encore être réduite puisque nous avons vu dans la section 2.1.2 que les niveaux réels correspondants à un même niveau fictif étaient énergétiquement très proches et à l'équilibre de Boltzmann. Dès lors, l'égalité  $\sum_i^{\text{[i]}} = \sum_i^{\text{g}_i}$  est vérifiée. On

en déduit donc la forme générale pour le calcul des coefficients d'Einstein des niveaux regroupés :

$$A_{\alpha\beta}^* = \frac{\sum_j \left[ g_j \left( \sum_i A_{ji} \right) \right]}{\sum_i g_i} \quad (2.1.68)$$

qui sont reportés en annexe B.

L'épaisseur optique du plasma n'étant pas nulle, nous avons pris en compte un facteur d'échappement du rayonnement résultant des transitions précédentes. Ce facteur noté  $\Lambda(k_0 Z)$  est fonction du coefficient d'absorption par unité de longueur du plasma  $k_0$  et son épaisseur  $Z(t)$ . Si le facteur d'échappement vaut 1, le plasma est optiquement mince. Le facteur d'échappement est défini par le rapport entre le nombre de photons émergeant par seconde de la couche et le nombre de photons émis par seconde par la couche. Dans ce modèle, compte tenu des niveaux de densités électroniques atteints, l'élargissement Doppler est négligé et nous ne considérons que l'élargissement Stark. Holstein [106] propose une expression pour le coefficient d'absorption par unité de longueur dans le cas d'un élargissement Stark sous la forme suivante :

$$k_0 = \left( \frac{\lambda_0^2}{2\pi} \right)^2 \frac{A_{ji}^*}{c\Delta\lambda_{Stark}} \left( \left[ Al_i^{(Z+)} \right] \frac{g_j}{g_i} - \left[ Al_j^{(Z+)} \right] \right) \quad (2.1.69)$$

Dans cette équation,  $\lambda_0$  est la longueur d'onde centrale de la raie,  $\Delta\lambda_{Stark} = 2\omega \frac{n_e}{10^{19}}$  est l'élargissement total à mi hauteur (FWHM<sup>10</sup>) sous l'effet du paramètre d'impact électronique  $\omega$  qui dépend lui-même de la température électronique. Par souci de simplicité sur ce point, nous avons choisi d'effectuer une large bibliographie des paramètres existants et nous avons interpolé par une droite l'évolution du paramètre d'impact électronique avec la température pour chaque espèce considérée (à savoir Al, Al<sup>+</sup> et Al<sup>2+</sup>). La grande majorité des données, reportées en annexe C, sont issues des travaux de Griem [88], de Konjević *et al.* (qui ont publié plusieurs articles de revue sur l'élargissement Stark)

---

10. Full Width at Half Maximum.

[127, 128, 129] et de Dimitrijević *et al.*<sup>11</sup> [54, 55, 56, 57]. Les valeurs moyennes utilisées pour le paramètre électronique d’élargissement Stark  $\omega$  sont :

- pour Al :  $\omega = 2,510.10^{-6} T_e + 1,253.10^{-1}$  nm
- pour Al<sup>+</sup> :  $\omega = 3,142.10^{-7} T_e + 2,868.10^{-2}$  nm
- pour Al<sup>2+</sup> :  $\omega = -1,070.10^{-7} T_e + 1,790.10^{-2}$  nm

Le facteur d’échappement  $\Lambda(k_0 Z)$  s’écrit :

$$\Lambda(k_0 Z) = k_0 Z \int_{k_0 Z}^{+\infty} \frac{\mathcal{T}_i\left(\frac{k_0 Z}{\cos \theta}\right)}{\left(\frac{k_0 Z}{\cos \theta}\right)^3} d\left(\frac{k_0 Z}{\cos \theta}\right) \quad (2.1.70)$$

où  $\theta$  mesure la direction du rayonnement émergeant de la couche d’épaisseur  $Z(t)$  par rapport à sa normale.  $\mathcal{T}_i$  vaut :

$$\mathcal{T}_i\left(\frac{k_0 Z}{\cos \theta}\right) = \int_0^{\frac{k_0 Z}{\cos \theta}} \mathcal{T}(k_0 L) d(k_0 L) \quad (2.1.71)$$

où  $\mathcal{T}$  est le facteur de transmission du rayonnement sur la longueur  $L$ . Le facteur de transmission dépend du profil de raie Stark par :

$$\mathcal{T}(k_0 L) = \frac{2}{\pi} \int_0^{+\infty} \frac{\exp\left(-\frac{k_0 L}{1+u^2}\right)}{1+u^2} du \quad (2.1.72)$$

La complexité mathématique résultant du couplage des équations (2.1.70), (2.1.71) et (2.1.72) rend impossible l’obtention d’une forme analytique pour  $\Lambda(k_0 Z)$ . Les résultats obtenus par traitement numérique (cf. figure 2.1.4) montrent qu’ils sont très bien représentés par l’équation :

$$\Lambda(k_0 Z) = 0,5 \exp\left(\frac{-k_0 Z}{0,821}\right) + 0,5 \exp\left(\frac{-k_0 Z}{11,14}\right) \quad (2.1.73)$$

sur la gamme [0 ; 15] pour  $k_0 Z$ . Cette gamme correspondant aux valeurs de  $k_0 Z$  de la situation traitée par le modèle : la forme (2.1.73) a par conséquent été adoptée. De plus, cette fonction respecte bien les conditions à la limite du facteur d’échappement. Le facteur d’échappement est nul lorsque l’épaisseur tend vers l’infini et est égale à l’unité lorsque le milieu n’absorbe pas le rayonnement ( $k_0 = 0$ ).

L’énergie volumique des lourds diminue du fait des pertes par émission spontanée. L’énergie volumique et la température étant étroitement liées comme nous l’avons montré dans la section 2.1.3, nous pouvons donner l’expression du terme  $\Theta_A(SE)$  pour une transition d’un niveau  $Al_j^{Z+}$  vers un niveau  $Al_i^{Z+}$  :

$$\Theta_A(SE) = - \left[ Al_j^{(Z+)} \right] A_{ji}^* \Lambda \frac{E_j - E_i}{\frac{3}{2} k_B \sum_{niv} [Al_{niv}]} \quad (2.1.74)$$

---

11. Il est à noter qu’une base de données sur l’élargissement Stark est en cours d’élaboration. Elle est consultable en ligne à l’adresse [http://stark-b.obspm.fr/index.php/stark\\_b/](http://stark-b.obspm.fr/index.php/stark_b/).

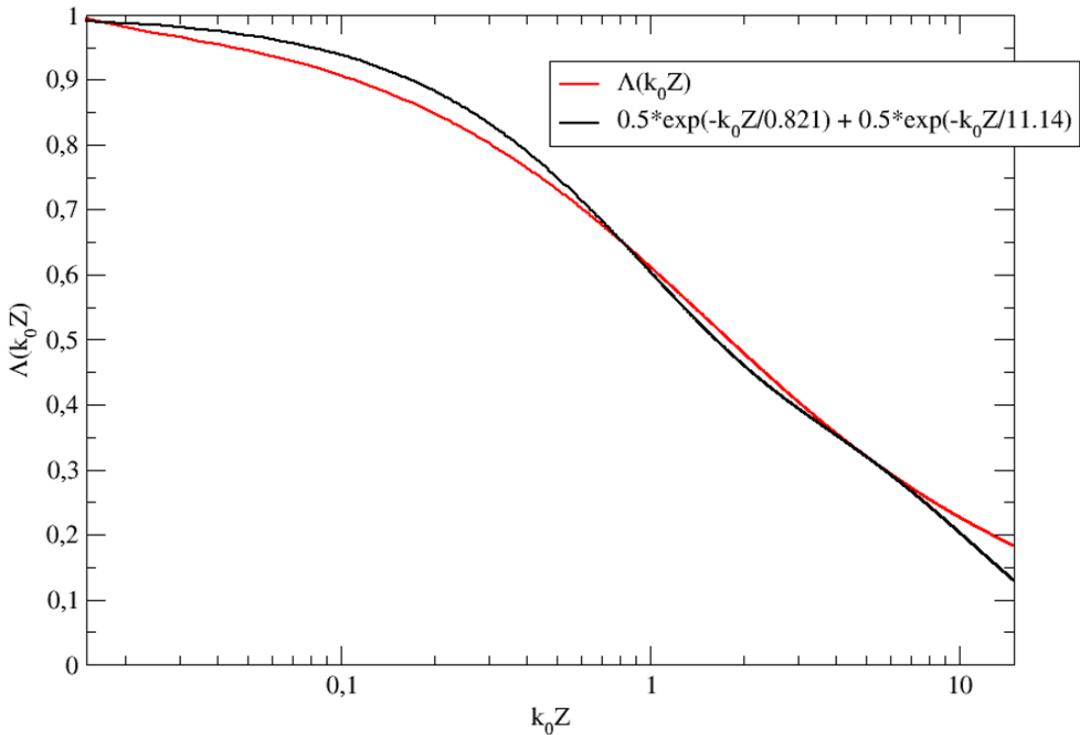


FIGURE 2.1.4 – Valeur de l'intégrale du facteur d'échappement  $\Lambda(k_0 Z)$  (courbe rouge) et de l'interpolation adoptée dans notre cas (courbe noire).

De plus, les densités de populations des niveaux évoluant sous l'effet de l'émission spontanée, il est possible de déterminer la vitesse de peuplement  $\Xi_{Al_i}$  (*SE*) du niveau *i* et celle de dépeuplement du niveau *j* de la manière suivante :

$$\Xi_{Al_i} \text{ (SE)} = \frac{d[Al_i]}{dt} = \left[ Al_j^{(Z+)} \right] A_{ji}^* \Lambda \quad (2.1.75)$$

$$\Xi_{Al_j} \text{ (SE)} = \frac{d[Al_j]}{dt} = - \left[ Al_j^{(Z+)} \right] A_{ji}^* \Lambda \quad (2.1.76)$$

L'émission spontanée est le dernier processus radiatif à avoir été intégré au modèle A. Dans la suite nous décrivons en détail les phénomènes collisionnels pris en compte.

#### 2.1.4.f L'ionisation par impact électronique (EI)

L'ionisation par impact électronique est un processus très courant pour la formation des plasmas thermiques. Lors de cette interaction, l'électron cède une part de son énergie cinétique à la particule lourde et plus particulièrement à l'électron de la couche périphérique qui peut ainsi s'extraire du champ du lourd. Il y a donc création d'un électron libre selon le processus :



Dans cette équation,  $Al_i^{Z+}$  représente la particule de charge *Z* sur le niveau d'énergie *i* et  $Al_j^{(Z+1)+}$  est l'ion de charge *Z* + 1 sur le niveau d'énergie *j* produit par la collision. L'électron incident ayant une énergie cinétique  $\varepsilon$ , les deux électrons après collision ont

une énergie égale à  $\varepsilon - E_{ji}$ . L'énergie  $E_{ji}$  correspond à la différence d'énergie interne entre  $\text{Al}_j^{(Z+1)+}$  et  $\text{Al}_i^{Z+}$ .

Il existe plusieurs jeux de sections efficaces. Dans notre modèle, nous utilisons la section efficace hydrogénoides proposée par Drawin [61] :

$$\sigma_{EI}(y) = 4\pi a_0^2 \left( \frac{E_{ion}^H}{E_{ji}} \right)^2 \alpha_i \frac{y-1}{y^2} \ln \left( \frac{5}{4} \beta_i y \right) \quad (2.1.78)$$

avec  $a_0$  le rayon de Bohr et  $E_{ion}^H$  l'énergie d'ionisation de l'atome d'hydrogène.  $\alpha_i$  et  $\beta_i$  sont des paramètres égaux à 0,05 et 4 dans ce modèle. Le terme  $y = \frac{\varepsilon}{E_{ji}}$  représente l'énergie cinétique adimensionnée de l'électron incident par rapport à l'énergie nécessaire pour réaliser l'ionisation.

Le taux d'une réaction du type (2.1.77) entre les niveaux  $j$  et  $i$  est calculé par l'intégration de la section efficace de la façon suivante :

$$k_{D,(EI)} = \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi m_e}} \int_a^{+\infty} x e^{-x} \sigma_{EI}(x) dx \quad (2.1.79)$$

où  $x = \frac{\varepsilon}{k_B T_e}$  correspond à l'énergie adimensionnée de l'électron et  $a = \frac{E_{ji}}{k_B T_e}$  est l'énergie minimale adimensionnée de l'électron incident nécessaire au processus.

Ce taux peut donc être écrit sous la forme :

$$k_{D,(EI)} = \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi m_e}} 4\pi a_0^2 \left( \frac{E_{ion}^H}{k_B T_e} \right)^2 \alpha_i \int_1^{+\infty} \frac{y-1}{y} \ln \left( \frac{5}{4} \beta_i y \right) e^{-ay} dy \quad (2.1.80)$$

Cette intégrale peut être calculée analytiquement grâce à deux fonctions mathématiques :

- l'exponentielle intégrale d'ordre  $n = 1$  notée  $E_{n=1}(a)$  :

$$E_n(a) = \int_1^\infty \frac{e^{-ay}}{y^n} dy \quad (2.1.81)$$

- l'exponentielle intégrale généralisée d'ordre  $n = 2$  notée  $G_{n=2}(a)$  [150] :

$$G_n(a) = \frac{1}{(n-1)!} \int_1^\infty \frac{e^{-ay}}{y} [\ln(y)]^{n-1} dy \quad (2.1.82)$$

Ainsi, nous exprimons les taux directs (exprimés en  $\text{m}^3 \text{s}^{-1}$ ) sous la forme :

$$k_{D,(EI)} = \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi m_e}} \left( \frac{E_{ion}^H}{k_B T_e} \right)^2 4\pi a_0^2 \alpha_i \left\{ \ln \left( \frac{5}{4} \beta_i \right) \left[ \frac{e^{-a}}{a} - E_1(a) \right] + \frac{E_1(a)}{a} - G_2(a) \right\} \quad (2.1.83)$$

Le taux inverse, c'est-à-dire le taux de recombinaison à trois corps (exprimé en  $\text{m}^6 \text{s}^{-1}$ ) est déduit du taux direct par l'équation d'équilibre de Saha et vaut :

$$k_{I,(EI)} = k_{D,(EI)} \frac{g_i}{g_j} \frac{h^3 e^{\frac{E_{ji}}{k_B T_e}}}{2(2\pi m_e k_B T_e)^{3/2}} \quad (2.1.84)$$

Comme pour les autres processus, il est possible d'exprimer la contribution de l'ionisation par impact électronique sur la température des lourds  $\Theta_A(EI)$  (eq. 2.1.85) et sur celle des électrons  $\Theta_e(EI)$  (eq. 2.1.86) :

$$\Theta_A(EI) = \{E_j - E_i\} n_e \frac{k_{D,(EI)} [Al_i^{Z+}] - k_{I,(EI)} [Al_j^{(Z+1)+}] n_e}{\frac{3}{2} k_B \sum_{niv} [Al_{niv}]} \quad (2.1.85)$$

$$\Theta_e(EI) = \{E_j - E_i\} \frac{k_{I,(EI)} [Al_j^{(Z+1)+}] n_e - k_{D,(EI)} [Al_i^{Z+}]}{\frac{3}{2} k_B} \quad (2.1.86)$$

pour une réaction d'ionisation particulière.

De même, il est possible de calculer les vitesses de réaction pour chaque espèce  $\Xi_{Al_i^{Z+}}(EI)$ ,  $\Xi_{Al_j^{(Z+1)+}}(EI)$  et  $\Xi_e(EI)$ . Ainsi :

$$\Xi_{Al_j^{(Z+1)+}}(EI) = \frac{d[Al_j^{(Z+1)+}]}{dt} = \left( k_{D,(EI)} [Al_i^{Z+}] - k_{I,(EI)} [Al_j^{(Z+1)+}] n_e \right) n_e \quad (2.1.87)$$

$$\Xi_{Al_i^{Z+}}(EI) = \frac{d[Al_i^{Z+}]}{dt} = \left( k_{I,(EI)} [Al_j^{(Z+1)+}] n_e - k_{D,(EI)} [Al_i^{Z+}] \right) n_e \quad (2.1.88)$$

et

$$\Xi_e(EI) = \frac{dn_e}{dt} = \left( k_{D,(EI)} [Al_i^{Z+}] - k_{I,(EI)} [Al_j^{(Z+1)+}] n_e \right) n_e \quad (2.1.89)$$

D'autres jeux de sections efficaces peuvent être utilisés pour caractériser l'ionisation par impact électronique. Notre collaboration avec le Professeur Djamel Benredjem du laboratoire Aimé Cotton de l'Université de Paris Sud Orsay permettra à terme d'implémenter un jeu de sections efficaces différent de celui de Drawin dans notre modèle. Le code HULLAC [16] permet de calculer le diagramme énergétique d'une espèce (atome ou ion) et de déterminer la valeur du taux ou de la section efficace pour une transition donnée. L'intégration de ces sections efficaces par rapport à l'énergie de l'électron après collision permet de déduire des taux pouvant être interpolés sous la forme d'une loi d'Arrhenius modifiée  $A_k T_e^{\alpha_k} \exp\left(-\frac{\beta_k}{T_e}\right)$  où  $A_k$ ,  $\alpha_k$  et  $\beta_k$  sont des paramètres dépendant de la transition considérée.

Outre l'ionisation par impact électronique, ces collisions inélastiques peuvent également conduire à l'excitation sur un niveau de plus grande énergie.

## 2.1.4.g L'excitation par impact électronique (EE)

Ce processus a pour effet de peupler les niveaux de haute énergie. Le principe est le même que dans le cas de l'ionisation par impact électronique. L'électron transfère une part de son énergie cinétique au lourd. Ainsi, un électron lié (il s'agit généralement de l'électron périphérique) accède à un niveau de plus haute énergie. L'équation caractérisant le processus est donc :



Pour l'excitation par impact électronique, il existe trois cas possibles.

- La transition est **optiquement autorisée** si  $\Delta l = \pm 1$ ,  $\Delta J = 0, \pm 1$  sauf la transition  $J = 0 \rightarrow J = 0$ . Dans ce cas, on retrouve la même section efficace que pour l'ionisation par impact électronique (2.1.78). Dans notre modèle nous utilisons les mêmes paramètres  $\alpha_i$  et  $\beta_i$  pour l'ionisation par impact électronique et pour l'excitation par impact électronique.
- La transition est **interdite pour cause de parité** si  $\Delta l \neq \pm 1$ . La section efficace hydrogénoidée proposée par Drawin s'écrit dans ce cas :

$$\sigma_{EE}(y) = 4\pi a_0^2 \alpha_e^P \frac{y-1}{y^2} \quad (2.1.91)$$

avec la valeur  $\alpha_e^P = 0,05$  choisie pour l'aluminium. Le terme  $y = \frac{\varepsilon}{E_{ji}}$  varie en fonction de  $\varepsilon$ , l'énergie cinétique de l'électron libre avant collision.

- La transition est **interdite pour cause de spin** si  $\Delta J \neq 0, \pm 1$  y compris la transition  $J = 0 \rightarrow J = 0$  et la section efficace proposée par Drawin vaut alors :

$$\sigma_{EE}(y) = 4\pi a_0^2 \alpha_e^S \frac{y^2 - 1}{y^5} \quad (2.1.92)$$

Grâce à ces sections efficaces, nous calculons les taux de réaction par intégration sur la gamme possible d'énergie pour l'électron par l'équation (2.1.79). Par le biais des exponentielles intégrales d'ordre un, deux, quatre et l'exponentielle intégrale généralisée d'ordre deux, nous obtenons les trois équations suivantes :

- si la transition est **autorisée** :

$$\begin{aligned} k_{D,(EE)} &= \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi m_e}} 4\pi a_0^2 \left( \frac{E_{ion}^H}{k_B T_e} \right)^2 \alpha_i \int_1^{+\infty} \frac{y-1}{y} \ln \left( \frac{5}{4} \beta y \right) e^{-ay} dy \\ &= \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi m_e}} 4\pi a_0^2 \left( \frac{E_{ion}^H}{k_B T_e} \right)^2 \alpha_i \left\{ \ln \left( \frac{5}{4} \beta_i \right) \left[ \frac{e^{-a}}{a} - E_1(a) \right] + \frac{E_1(a)}{a} - G_2(a) \right\} \end{aligned} \quad (2.1.93)$$

- si la transition est **interdite pour cause de parité** :

$$\begin{aligned} k_{D,(EE)} &= \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi m_e}} 4\pi a_0^2 \left( \frac{E_j - E_i}{k_B T_e} \right)^2 \alpha_e^P \int_1^{+\infty} \frac{y-1}{y} e^{-ay} dy \\ &= \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi m_e}} 4\pi a_0^2 a^2 \alpha_e^P \left[ \frac{e^{-a}}{a} - E_1(a) \right] \end{aligned} \quad (2.1.94)$$

- si la transition est **interdite pour cause de spin** :

$$\begin{aligned} k_{D,(EE)} &= \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi m_e}} 4\pi a_0^2 \left( \frac{E_j - E_i}{k_B T_e} \right)^2 \alpha_e^S \int_1^{+\infty} \frac{y^2 - 1}{y^4} e^{-ay} dy \\ &= \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi m_e}} 4\pi a_0^2 a^2 \alpha_e^S [E_2(a) - E_4(a)] \end{aligned} \quad (2.1.95)$$

La loi d'équilibre de Boltzmann nous permet de déduire le taux du processus inverse, exprimé en  $\text{m}^3 \text{s}^{-1}$  :

$$k_{I,(EE)} = k_{D,(EE)} \frac{g_i}{g_j} \exp \left( \frac{E_j - E_i}{k_B T_e} \right) \quad (2.1.96)$$

Dès lors, il est possible d'exprimer les termes  $\Theta_A(EE)$  et  $\Theta_e(EE)$  caractérisant l'influence de l'excitation par impact électronique pour le processus (2.1.90) sur la température des lourds et celle des électrons :

$$\Theta_A(EE) = \{E_j - E_i\} n_e \frac{k_{D,(EE)} [Al_i^{(Z+)}] - k_{I,(EE)} [Al_j^{(Z+)}]}{\frac{3}{2} k_B \sum_{niv} [Al_{niv}]} \quad (2.1.97)$$

$$\Theta_e(EE) = \{E_j - E_i\} \frac{k_{I,(EE)} [Al_j^{(Z+)}] - k_{D,(EE)} [Al_i^{(Z+)}]}{\frac{3}{2} k_B} \quad (2.1.98)$$

De même, les termes  $\Xi_{[Al_i^{(Z+)}]}(EE)$  et  $\Xi_{[Al_j^{(Z+)}]}(EE)$  caractérisant la vitesse de réaction des espèces peuvent être exprimés :

$$\Xi_{[Al_i^{(Z+)}]}(EE) = \frac{d[Al_i^{(Z+)}]}{dt} = \left( k_{I,(EE)} [Al_j^{(Z+)}] - k_{D,(EE)} [Al_i^{(Z+)}] \right) n_e \quad (2.1.99)$$

$$\Xi_{[Al_j^{(Z+)}]}(EE) = \frac{d[Al_j^{(Z+)}]}{dt} = \left( k_{D,(EE)} [Al_i^{(Z+)}] - k_{I,(EE)} [Al_j^{(Z+)}] \right) n_e \quad (2.1.100)$$

## 2.1.4.h Les collisions élastiques (EC)

Les collisions élastiques conduisent à la thermalisation du plasma. Chaque collision entre électron et lourd permet un transfert d'énergie cinétique sans modification de l'état interne des lourds selon :



Il s'agit d'un transfert d'énergie dont la fréquence de collisions  $\nu_{elas}$  vaut :

$$\nu_{elas} = \bar{\sigma}_{Al} \bar{v}_e [Al] + \frac{\sqrt{2\pi} e^4}{\sqrt{m_e} (4\pi\epsilon_0)^2} \frac{n_+}{(k_B T_e)^{3/2}} \ln \left( \frac{12\pi}{\sqrt{n_e}} \frac{(\epsilon_0 k_B T_e)^{3/2}}{e^3} \right) \quad (2.1.102)$$

en supposant les ions  $Al^+$  majoritaires dans l'écrantage des champs électrostatiques internes au plasma. Dans cette équation, le terme  $n_+ = [Al^+] + [Al^{2+}] + [Al^{3+}]$  représente la somme des densités en ions.  $\bar{\sigma}_{Al}$  est la section efficace moyenne de collision élastique électron/neutre. Les travaux de Ryabikh *et al.* [202] et Jablonski *et al.* [114] permettent d'attribuer à la section efficace une valeur précise sur une gamme d'énergie de l'électron suffisamment large [0 ; 50] eV (cf. figure 2.1.5). La section efficace moyenne définie par :

$$\bar{\sigma}_{Al}(T_e) = \int_0^{+\infty} x e^{-x} \sigma_{Al}(x) dx \quad (2.1.103)$$

où  $x = \frac{\varepsilon}{k_B T_e}$  est calculé jusqu'à  $T_e = 5$  eV. On constate que cette section efficace moyenne varie de 50 % autour de  $7.10^{-19} \text{ m}^2$  sur la gamme [0,75 ; 3] eV attendue pour la température électronique. Ces variations étant faibles et les collisions élastiques jouant plutôt un rôle aux temps longs comme nous le verrons au chapitre 3.1, nous avons choisi de considérer

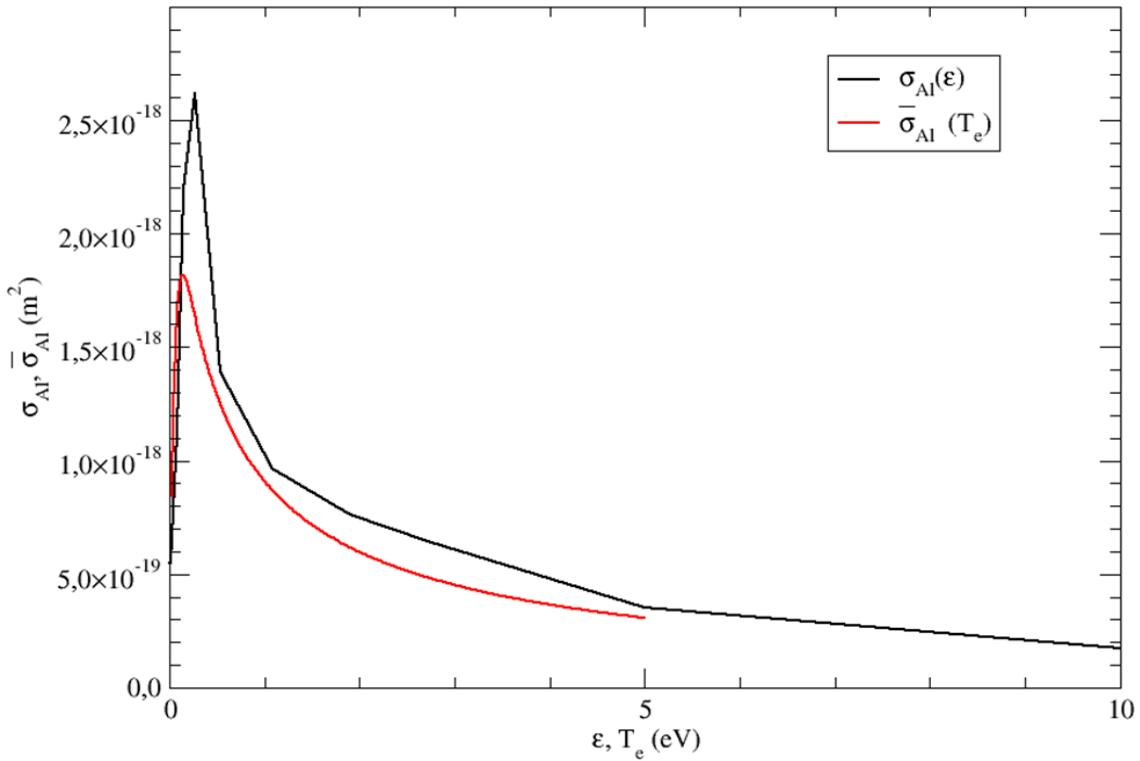


FIGURE 2.1.5 – Évolution de la section efficace en fonction de l'énergie (courbe noir) et de la section efficace moyenne en fonction de la température électronique  $T_e$  exprimée en eV (courbe rouge).

la section efficace moyenne comme indépendante de  $T_e$  avec la valeur  $\bar{\sigma}_{Al} = 7.10^{-19} \text{ m}^2$ . Cette hypothèse permet par ailleurs de simplifier le traitement numérique des équations (2.1.9) et (2.1.10).

L'influence des collisions élastiques sur l'évolution des températures du plasma s'écrit :

$$\Theta_A(EC) = \frac{n_e}{\sum_{niv} [Al_{niv}]} \frac{m_e}{m_A} \nu_{elas} (T_e - T_A) \quad (2.1.104)$$

pour les lourds à la température  $T_A$  et :

$$\Theta_e(EC) = \frac{m_e}{m_A} \nu_{elas} (T_A - T_e) \quad (2.1.105)$$

pour les électrons à la température  $T_e$ .

#### 2.1.4.i Le stockage d'énergie de translation ( $u_1$ )

Le passage de l'équation (2.1.8) à l'équation (2.1.10) met en évidence l'influence du terme :

$$\Theta_A(u_1) = - \frac{T_A}{\sum_{niv} [Al_{niv}]} \frac{d[Al_{niv}]}{dt} \quad (2.1.106)$$

pour l'état excité  $Al_{niv}$  sur la variation par seconde de la température  $T_A$ . Ce terme rend compte du stockage de l'énergie de translation du gaz de lourds induite par une variation de la densité de population de  $Al_{niv}$ .

En effet, si  $\frac{d[Al_{niv}]}{dt} > 0$ , alors  $\Theta_A(u_1) < 0$  : cela signifie que l'énergie interne du gaz de lourds est distribuée sur un plus grand nombre de particules menant ainsi à une diminution de  $T_A$ . On en déduit que le terme  $\Theta_A(u_1)$  pour l'ensemble des niveaux  $Al_{niv}$  correspond à l'influence des collisions élastiques entre lourds sur le gaz qu'ils forment.

Un terme semblable est évidemment mis en évidence concernant les électrons lors du passage de l'équation (2.1.7) à l'équation (2.1.9). Le terme est noté :

$$\Theta_e(u_1) = -\frac{T_e}{n_e} \frac{dn_e}{dt} \quad (2.1.107)$$

et correspond, en analogie avec les lourds, à la redistribution par collisions élastiques de l'énergie des électrons suite à une variation de leur densité.

#### 2.1.4.j Le stockage d'énergie d'excitation et d'ionisation ( $u_2$ )

Le passage de l'équation (2.1.8) à l'équation (2.1.10) met également en évidence l'influence du terme :

$$\Theta_A(u_2) = -\frac{1}{\frac{3}{2}k_B \sum_{niv} [Al_{niv}]} E_{niv} \frac{d[Al_{niv}]}{dt} \quad (2.1.108)$$

Il reflète l'influence sur la température  $T_A$  de la variation de la densité de population de l'état excité  $Al_{niv}$  : sommé sur tous ces niveaux excités, le terme en question rend compte du couplage entre états excités par les collisions inélastiques assurés par les lourds, donc du stockage d'énergie dans l'excitation et l'ionisation qui en résulte.

### 2.1.5 Bilan de l'influence des processus sur la températures et les densités

Les équations (2.1.9) et (2.1.10) peuvent être écrites comme la somme des différentes contributions décrites dans les sections précédentes :

$$\begin{aligned}
\frac{dT_e}{dt} = & \underbrace{\sum_{Z,i,j} \frac{2(kh\nu - \Delta E_{ji})}{3k_B n_e} \left( k_{D,(MPI)} [Al_i^{Z+}] - k_{I,(MPI)} [Al_j^{(Z+1)+}] n_e \right)}_{\Theta_e(MPI)} \\
& + \underbrace{\frac{\varphi_{las}}{\frac{3}{2}k_B} \left( K_{IB}^{e,n}[Al] + \sum_Z \{ K_{IB}^{e,i}(Z) [Al^{Z+}] \} \right) \left[ 1 - \exp \left( -\frac{h\nu_{las}}{k_B T_e} \right) \right]}_{\Theta_e(IB)} \\
& - \underbrace{\frac{32}{3m_e h c^3} \bar{v}_e \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \left( [Al] \bar{\sigma}_{Al} 2k_B T_e^2 + \frac{\pi^2}{3\sqrt{3}k_B} G \frac{e^4}{(4\pi\epsilon_0)^2} \sum_Z Z^2 [Al^{Z+}] \right)}_{\Theta_e(TB)} \\
& + \underbrace{\sum_{Z,i,j} \frac{2\Delta E_{ji}}{3k_B} \left\{ k_{I,(EI)} [Al_j^{(Z+1)+}] n_e - k_{D,(EI)} [Al_i^{Z+}] \right\}}_{\Theta_e(EI)} \\
& + \underbrace{\sum_{Z,i,j} \frac{2\Delta E_{ji}}{3k_B} \left( k_{I,(EE)} [Al_j^{Z+}] - k_{D,(EE)} [Al_i^{Z+}] \right)}_{\Theta_e(EE)} \\
& + \underbrace{\frac{m_e}{m_A} \nu_{elas} (T_A - T_e)}_{\Theta_e(EC)} + \underbrace{\frac{2}{3k_B n_e} \frac{\varphi_{ee}}{Z(t)}}_{\Theta_e(\varphi)} - \underbrace{\frac{T_e}{n_e} \frac{dn_e}{dt}}_{\Theta_e(u_1)}
\end{aligned} \tag{2.1.109}$$

et

$$\begin{aligned}
\frac{dT_A}{dt} = & \underbrace{\frac{2}{3k_B \sum_{niv} [Al_{niv}] \sum_{Z,i,j}} \left\{ \Delta E_{ji} \left( k_{D,(MPI)} [Al_i^{Z+}] - k_{I,(MPI)} [Al_j^{(Z+1)+}] n_e \right) \right\}}_{\Theta_A(MPI)} \\
& - \underbrace{\frac{2n_e}{3k_B \sum_{niv} [Al_{niv}] \sum_{Z,i,j}} \left\{ k_{I,(EI)} [Al_j^{(Z+1)+}] n_e - k_{D,(EI)} [Al_i^{Z+}] \right\}}_{\Theta_A(EI)} \\
& - \underbrace{\frac{2n_e}{3k_B \sum_{niv} [Al_{niv}] \sum_{Z,i,j}} \left\{ k_{I,(EE)} [Al_j^{Z+}] - k_{D,(EE)} [Al_i^{Z+}] \right\}}_{\Theta_A(EE)} \\
& - \underbrace{\frac{2}{3k_B \sum_{niv} [Al_{niv}] \sum_{Z,i,j}} \left[ Al_j^{Z+} \right] A_{ji}^* \Lambda(k_0 Z) \Delta E_{ji} - \sum_{niv} \frac{n_e}{[Al_{niv}]} \frac{m_e}{m_A} \nu_{elas} (T_A - T_e)}_{\Theta_A(SE) \quad \Theta_A(EC)} \\
& + \underbrace{\frac{2}{3k_B \sum_{niv} [Al_{niv}] Z(t)} \frac{\varphi_{eA}}{Z(t)} - \sum_{niv} \frac{T_A}{[Al_{niv}]} \frac{d[Al_{niv}]}{dt}}_{\Theta_A(\varphi) \quad \Theta_A(u_1)} \\
& - \underbrace{\frac{2}{3k_B \sum_{niv} [Al_{niv}]} \sum_{niv} \left( E_{niv} \frac{d[Al_{niv}]}{dt} \right)}_{\Theta_A(u_2)}
\end{aligned} \tag{2.1.110}$$

De même, nous pouvons écrire la variation de densité des électrons sous la forme :

$$\begin{aligned}
\frac{dn_e}{dt} = & \underbrace{\sum_j \sum_i \left( k_{D,(MPI)} [Al_i^{(Z-1)+}] - k_{I,(MPI)} [Al_j^{Z+}] n_e \right)}_{\Xi_e(MPI)} \\
& + \underbrace{\sum_j \sum_i \left( k_{D,(EI)} [Al_i^{(Z-1)+}] - k_{I,(EI)} [Al_j^{Z+}] n_e \right) n_e}_{\Xi_e(EI)} + \underbrace{\frac{\|\vec{\varphi}_N\|}{Z(t)} f_{evap}}_{\Xi_e(\varphi)}
\end{aligned} \tag{2.1.111}$$

La variation de densité de population de  $\text{Al}_1$  prend la forme :

$$\begin{aligned}
 \frac{d[\text{Al}_1]}{dt} = & \underbrace{\sum_j (k_{I,(MPI)} [\text{Al}_j^+] n_e - k_{D,(MPI)} [\text{Al}_1])}_{\Xi_{\text{Al}_1} (\text{MPI})} \\
 & + \underbrace{\sum_j (k_{I,(EI)} [\text{Al}_j^+] n_e - k_{D,(EI)} [\text{Al}_1]) n_e}_{\Xi_{\text{Al}_1} (\text{EI})} \\
 & + \underbrace{\sum_j (k_{I,(EE)} [\text{Al}_j] - k_{D,(EE)} [\text{Al}_1]) n_e}_{\Xi_{\text{Al}_1} (\text{EE})} \\
 & + \underbrace{\sum_j [\text{Al}_j] A_{j1}^* \Lambda + \underbrace{\frac{\|\vec{\varphi}_N\|}{Z(t)} (1 - 2f_{evap}) \frac{g_1}{g_1 + g_2}}_{\Xi_{\text{Al}_1} (\text{SE})} \Xi_{\text{Al}_1} (\varphi)
 \end{aligned} \tag{2.1.112}$$

Les variations de densité de population des autres niveaux prennent une forme analogue. Cependant, il convient d'adapter l'équation (2.1.112) à l'état qui correspond. En effet, l'évaporation n'étant considérée que pour  $\text{Al}_1$ ,  $\text{Al}_2$  et  $\text{Al}_1^+$ , ce terme n'intervient pas dans les équations pour les autres états.

Ces quatre équations permettront de tracer l'évolution temporelle des influences de chaque processus. Afin que la majorité des données puissent apparaître sur une seule et même figure, nous avons pris quelques précautions qui sont détaillées ici en considérant comme exemple  $\Theta_A (\text{MPI})$  :

- afin d'éliminer les faibles influences, nous posons  $\Theta_A (\text{MPI}) = 0$  si à un instant donné la condition  $-1 \leq \Theta_A (\text{MPI}) \leq 1$  est vérifiée,
- dès lors, si  $\Theta_A (\text{MPI}) < -1$ , nous posons  $-\log |\Theta_A (\text{MPI})|$
- et si  $\Theta_A (\text{MPI}) > 1$ , alors nous écrivons  $\log (\Theta_A (\text{MPI}))$ .

De cette manière, nous pouvons quantifier les influences de chaque processus sur un même graphique en échelle linéaire<sup>12</sup>. Les valeurs positives contribuent à l'augmentation de la température (ou de la densité de population du niveau) et les valeurs négatives contribuent à sa diminution. De plus, imposer une valeur nulle pour les valeurs inférieures à l'unité permet de s'affranchir des faibles valeurs du logarithme décimal qui rendrait le graphique illisible. Les graphiques où sont tracés l'évolution temporelle des influences de chaque processus sont présentés au chapitre 3.1.

## 2.1.6 Solveur d'équations différentielles ordinaires couplées DVODE

La résolution numérique de ce modèle est réalisée selon un schéma implicite par rapport à la variable temporelle par l'intermédiaire d'un solveur d'équations différentielles

<sup>12</sup> Dès lors, chaque unité de graduation correspond donc à un ordre de grandeur de l'influence du processus.

ordinaires non-linéaires couplées du premier ordre nommé **DVODE** [26]. Il a été mis au point par P. N. Brown, A. C. Hindmarsh et G. D. Byrne et est en libre accès sur internet. L'utilisateur doit informer trois paramètres :

- la valeur initiale de toutes les inconnues nommées  $y(i)$ . Il est conseillé de ne pas initialiser ces valeurs à zero afin d'assurer une bonne stabilité numérique.
- puis, à chaque instant les valeurs des dérivées temporelles pour chaque inconnue :  $\frac{dy(i)}{dt}$
- ainsi que les valeurs des dérivées partielles de ces dérivées par rapport aux autres inconnues :  $pd(i, j) = \frac{\partial}{\partial y(j)} \frac{dy(i)}{dt}$ . Ces valeurs sont celles de la matrice jacobienne du système d'équations. Notons que le solveur DVODE dispose d'une procédure interne pour calculer la matrice jacobienne. Cependant, ce calcul est très approché : il est donc conseillé de spécifier les valeurs de cette matrice pour que le solveur puisse converger vers une solution stable.

De plus, comme pour tout solveur numérique, il est nécessaire de spécifier la tolérance du calcul à l'atteinte de la solution. Dès lors nous devons préciser une tolérance relative pour chaque inconnue ainsi qu'une tolérance absolue pour l'ensemble des solutions. Notons toutefois que la vitesse d'exécution de DVODE est fonction de ces tolérances. Il est donc nécessaire qu'elles soient bien adaptées à l'ensemble des équations. Pour que le calcul converge vers une solution stable à chaque instant du calcul, il est nécessaire que la solution établie au pas de temps précédent soit proche de la solution exacte. Ainsi, le solveur sera d'autant plus long à converger que la solution du pas de temps précédent sera imprécise. De ce fait, il est tout à fait possible que des tolérances plus restrictives conduisent à un calcul plus rapide et inversement.

Enfin, un pas de temps doit être fixé pour que les appels itératifs du solveur puissent conduire à l'évolution temporelle des solutions. Le solveur DVODE dispose d'une procédure interne permettant d'estimer le pas de temps optimal qui sera par conséquent variable pour l'utilisateur. Cette option permet de laisser toute liberté au solveur pour qu'il converge vers une solution compte tenu de la raideur du système à l'instant considéré.



# Chapitre 2.2

## Modèle couplé B

Dans les sous-sections 2.2.2.a et 2.2.2.b, nous discutons de la valeur du point critique et d'autres données thermophysiques de l'aluminium comme la pression de vapeur saturante. Même si ces discussions peuvent apparaître techniques et assez éloignées de la description du modèle B, nous avons préféré les aborder ici plutôt que les rejeter en annexe : les valeurs du point critique et de la pression de vapeur saturante sont des grandeurs fondamentales du modèle et ces discussions permettent d'en saisir les limites.

### 2.2.1 Cas-test

La principale différence entre ce modèle couplé et le modèle A développé dans le chapitre précédent est la prise en compte directe de l'interaction laser/surface. Dans le modèle B, l'intégralité de la cible est prise en compte. Les profils de température dans la cible sont déterminés compte tenu des phénomènes de conduction instationnaire. La température de surface  $T_S$ , qui reste la donnée essentielle pour la modélisation de la phase plasma, est supposée initialement à température ambiante. L'importante augmentation de  $T_S$  résultant de  $\varphi_{las}$  conduit à la liquéfaction de l'échantillon. Ce modèle prend donc en compte le changement de phase solide → liquide. La pression de vapeur saturante pour des températures inférieures à la température de fusion est supposée négligeable ( $P_{vap} < 10^{-6}$  Pa). L'évaporation débute donc lorsqu'une fine couche de liquide s'est formée en surface de la cible. Des instabilités numériques concernant les densités de population des niveaux très excités se produisent lorsque l'on suppose l'existence d'un plasma à ces températures dans ces conditions. Le choix de commencer l'évaporation à partir du point de fusion résulte également de ces observations. La phase plasma est modélisée exactement de la même manière que dans le modèle A.

D'un point de vue numérique, nous avons maillé la cible à l'aide de cellules de 25 nm. Les équations de bilan d'énergie à l'intérieur de la cible sont résolues à l'aide d'un schéma numérique implicite du second ordre. Notons que la longueur de pénétration est de l'ordre de 10 nm pour l'ensemble des métaux [180] soumis à un rayonnement visible et l'épaisseur de peau est voisine de 20 nm pour l'aluminium soumis à du rayonnement visible proche infrarouge [19]. Nous pouvons donc supposer que le rayonnement laser est absorbé par la première maille située en surface. Ce rayonnement constitue une assez faible proportion du rayonnement incident : nous verrons dans la section 3.2.2 que l'absorptivité de l'aluminium est assez faible autour de 532 nm. Dans ces conditions, il est inutile de prendre en compte la loi de Beer-Lambert au travers des différentes mailles.

La température à l'intérieur de la cible peut varier de la température ambiante à la

température critique. On rappelle que le modèle décrit des situations monophasiques où la température en surface est donc inférieure à la température critique  $T_c$ . Il est évident que les propriétés thermophysiques évoluent entre ces deux températures. Nous avons donc répertorié ces évolutions sur la gamme de température considérée.

## 2.2.2 Étude des données thermophysiques de l'aluminium

### 2.2.2.a Point critique de l'aluminium

Une large bibliographie a été faite afin de donner une estimation la plus précise possible (et la plus récente possible) du point critique. Nous avons vu que les hypothèses du modèle permettent une description du phénomène uniquement pour des températures inférieures à la température critique  $T_c$ . Il est donc nécessaire de donner une valeur à cette température. Un article sur ce sujet a été publié en 2009 [166] dont une copie est placée en annexe E de ce manuscrit. Outre les divers articles de la littérature proposant une estimation théorique de  $T_c$ , quatre méthodes permettant une estimation de cette température à partir de mesures récentes et de calculs des propriétés physiques de l'aluminium ont été proposées. Elles concernent :

- **l'enthalpie de vaporisation.** Une estimation théorique de la température critique peut être faite par l'intermédiaire de l'équation empirique de Dupré :

$$\ln\left(\frac{P_{vap}}{P_0}\right) = A + \frac{B}{T} + C \ln\left(\frac{T}{T_0}\right) \quad (2.2.1)$$

où  $A$ ,  $B$  et  $C$  sont des constantes données dans la littérature [4, 111]. Ces équations permettent de déterminer la température et l'enthalpie de vaporisation à pression atmosphérique (notées respectivement  $T_v$  et  $\Delta h_v$ ) ainsi que la dérivée de l'enthalpie de vaporisation par rapport à la température  $\frac{d\Delta h_v}{dT}$  que l'on peut réécrire sous la forme  $\frac{d\Delta h_v}{dT} = CR_{GP}$  par l'intermédiaire de l'équation de Clausius-Clapeyron.  $R_{GP} = 8,3145 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$  est la constante des gaz parfaits. Le calcul de ces trois grandeurs permet de calculer une valeur théorique pour la température critique par l'équation donnée par Fish et Lielmezs [70] :

$$T_c = T_v \frac{2 \left[ 1 - T_v \frac{\frac{d\Delta h_v}{dT}}{\Delta h_v} \right]}{1 - 2T_v \frac{\frac{d\Delta h_v}{dT}}{\Delta h_v} - n + m} \quad (2.2.2)$$

où  $n$  et  $m$  sont des constantes fonction du matériau considéré. Pour l'aluminium (et les métaux liquides en général), Fish et Lielmezs donnent  $n = 0,20957$  et  $m = -0,17467$ .

Selon les paramètres  $A$ ,  $B$ , et  $C$  considérés, la valeur de la température critique peut varier sur la gamme [7500 ; 8900] K. Cependant, Alcock *et al.* précisent dans leur article [4] que les valeurs des paramètres  $A$ ,  $B$  et  $C$  aboutissant à  $T_c = 7504$  K sont les plus précises. C'est donc cette valeur que nous retiendrons pour l'estimation de la température critique par cette méthode.

- **l'enthalpie de cohésion.** C'est l'énergie d'attraction inter-atomique lorsque le matériau est en phase liquide. Elle varie avec la température et devient logiquement nulle lorsque la température critique est atteinte puisque l'état liquide n'existe plus. On peut ainsi définir l'enthalpie de cohésion  $h_l^c(T)$  d'un liquide à la température  $T$  par :

$$h_l^c(T) = h_l(T) - h_l(T_c) \quad (2.2.3)$$

où  $h_l$  correspond à l'enthalpie spécifique du liquide. Afin d'estimer la température critique dans ces conditions, nous avons supposé que l'interpolation de points expérimentaux concernant l'enthalpie spécifique déterminée par Gathers [78] pour la gamme [933 ; 4000] K pouvait être étendue jusqu'à la température critique<sup>1</sup> :

$$h_l(T) = 1319,7 + 28,881T + 6,2284 \cdot 10^{-4}T^2 \quad (2.2.4)$$

De plus, Kaptay a établi une relation semi-empirique pour déterminer l'enthalpie de cohésion [118, 119] :

$$h_l^c(T_f) = -q_1 R_{GPT} T_f - q_2 (R_{GPT} T_f)^2 \quad (2.2.5)$$

où  $q_1 = 26,3 \cdot 10^{-4}$  et  $q_2 = -2,62 \cdot 10^{-4}$  mol J<sup>-1</sup> sont des paramètres semi empiriques. Les équations (2.2.3), (2.2.4) et (2.2.5) conduisent à l'estimation de la température critique par cette méthode. On aboutit à  $T_c = 6548$  K.

- **la tension superficielle.** Tout comme l'enthalpie de cohésion, la tension superficielle est nulle au point critique. Plusieurs travaux ont mené à des estimations de la température critique par cette méthode. Nous pouvons citer les travaux de Binder [21] qui permettent d'aboutir à une expression de la tension superficielle souvent reprise dans la littérature :

$$\gamma(T) = \gamma_0 \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^n \quad (2.2.6)$$

où  $\gamma_0$  est une constante dépendante du matériau étudié. On peut en déduire :

$$\begin{aligned} \frac{d\gamma}{dT} &= -n\gamma_0 \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^{n-1} \frac{1}{T_c} \\ &= -\frac{n\gamma}{T_c - T} \end{aligned} \quad (2.2.7)$$

D'où :

$$T_c = T - \frac{n\gamma}{\frac{d\gamma}{dT}} \quad (2.2.8)$$

$n = 1,26$  est une valeur bien adaptée au cas des métaux. De plus, pour  $T = 1375$  K, Molina *et al.* [165] ont mesuré sur l'aluminium les valeurs suivantes de  $\gamma$  et  $\frac{d\gamma}{dT}$  :

- $\gamma = 0,85 \text{ N m}^{-1}$
- $\frac{d\gamma}{dT} = -0,185 \text{ mN m}^{-1} \text{ K}^{-1}$

---

1. Notons que ces expériences ont été faites à haute pression ( $P = 0,3 \cdot 10^6$  Pa) mais que des résultats similaires ont été trouvés par Gathers et Ross à plus faible pression ( $P = 0,2 \cdot 10^6$  Pa) [79]. Nous avons donc supposé que la pression jouait un rôle mineur sur l'évolution de l'enthalpie spécifique.

On en déduit l'estimation de la température critique de l'aluminium par cette méthode :  $T_c = 7164$  K.

- **l'équation d'état.** Nous n'aborderons ici que deux méthodes permettant d'aboutir à une équation d'état : la méthode PLJC (*Perturbed Lennard-Jones Chain*) proposée par Chiew *et al.* [43] et la méthode PHSC (*Perturbed Hard Sphere Chain* par une attraction de van der Waals) proposée par exemple par Eslami [63]. Les deux méthodes aboutissent à la forme suivante :

$$\frac{P}{nk_B T} = f_1(\eta) + f_2(\eta) \quad (2.2.9)$$

où  $n$  est la densité de particules,  $\eta$  est un terme dépendant de la densité et de la température,  $f_1$  est le terme répulsif (il est proportionnel à  $n$  pour la méthode PHSC) et  $f_2$  le terme attractif (proportionnel à  $n^3$  pour la méthode PLJC). Ces deux termes dépendent dans les deux cas des paramètres de Lennard-Jones  $\sigma_{LJ}$  et  $\epsilon_{LJ}$  qui sont respectivement un rayon et une énergie de référence. Mousazadeh et Ghanadi Marageh [169] font une estimation de ces termes et obtiennent  $\sigma_{LJ} = 2,85 \cdot 10^{-9}$  m et  $\frac{\epsilon_{LJ}}{k_B} = 4287$  K dans le cas de l'aluminium. En injectant ces résultats dans l'équation d'état déterminée par la méthode PLJC, on aboutit à une température critique de 5698 K. Concernant la méthode PHSC, nous utilisons la même valeur que précédemment pour  $\epsilon_{LJ}$  et nous avons déterminé  $\sigma_{LJ}$  en utilisant l'équation d'état appliquée au point de fusion. On aboutit à  $\sigma_{LJ} = 2,52 \cdot 10^{-10}$  m. Ces nouvelles valeurs des paramètres de Lennard-Jones conduisent à une autre estimation de la température critique :  $T_c = 6063$  K.

Nous avons donc déterminé des valeurs de la température critique par plusieurs méthodes. N'ayant aucune raison de préférer une méthode plutôt qu'une autre, nous avons fait une moyenne de celles-ci. Cette valeur moyenne corrélée avec les valeurs de  $T_c$  données dans la littérature permet finalement d'aboutir à une estimation de la température critique de l'aluminium :

$$T_c = (6700 \pm 800) \text{ K} \quad (2.2.10)$$

D'autre part, les équations d'état nous ont permis d'estimer la masse volumique et la pression critiques. Par comparaison avec les valeurs de la littérature (qui ne sont pas rappelées ici mais disponibles dans la publication en question en annexe E), nous proposons les valeurs suivantes :

$$\rho_c = (620 \pm 70) \text{ kg m}^{-3} \quad (2.2.11)$$

$$P_c = (4,05 \cdot 10^8 \pm 0,62 \cdot 10^8) \text{ Pa} \quad (2.2.12)$$

Le point critique étant connu, il est possible de déterminer l'évolution avec la température des propriétés thermophysiques de l'aluminium sur la gamme [298 ; 6700] K.

### 2.2.2.b Données thermophysiques sur la gamme 298 - 6700 K

L'interaction laser/matière prise en compte dans le modèle B nécessite la connaissance de plusieurs données thermophysiques :

- la **pression de vapeur saturante** en fonction de la température de surface afin de modéliser l'évaporation via la couche de Knudsen et

- la **conductivité thermique**, la **diffusivité thermique**, la **masse volumique**, la **capacité thermique massique** et l'**enthalpie volumique** en fonction de la température afin de prendre correctement en compte les phénomènes de diffusion de l'énergie thermique à l'intérieur de la cible et de changement de phase solide → liquide.

Le tableau D.6 de l'annexe D donne l'évolution de ces grandeurs thermophysiques en fonction de la température qui seront utilisées dans le modèle. Les valeurs qu'il contient n'étant pas toutes issues de la littérature, l'annexe D retrace également les différentes étapes qui ont conduit à l'élaboration du tableau D.6 dans l'ordre suivant :

- le **tableau D.2** regroupe les valeurs issues de la littérature :
  - La capacité thermique molaire à pression constante  $C_p$  est issue du site de la NASA [233]. Le centre de recherche Glenn a développé un code (nommé CAP) permettant de calculer les propriétés thermodynamiques des éléments du tableau de Mendeleïev en fonction de la température [255]. Ce code est basé sur l'utilisation d'un polynôme qui diffère selon le matériau et son état physique. Les valeurs de la capacité thermique molaire à pression constante donnée par le code CAP varient avec la température pour l'aluminium solide mais reste constantes lorsqu'il est à l'état liquide.
  - La capacité thermique massique à pression constante  $c_p$  répertoriée dans ce tableau vaut  $c_p = \frac{C_p}{\mathcal{M}}$  où  $\mathcal{M} = 2,698 \cdot 10^{-2} \text{ kg mol}^{-1}$  est la masse molaire issue du site du NIST [60].
  - La conductivité thermique  $k_T$  est issue du rapport de Touloukian et Ho [227] où apparaît une revue critique des données existant sur l'aluminium et les alliages d'aluminium. La conductivité thermique de l'aluminium solide et liquide est donnée à plus ou moins 3 % près sur la gamme [300 ; 1250] K. De plus, des estimations pour des températures supérieures et ce jusqu'au point critique (fixée à 8500 K dans ce rapport) sont proposées. Par souci de clarté, nous avons distingué par un code de couleur les valeurs estimées des autres valeurs. De plus, nous supposons que la conductivité thermique évolue linéairement avec  $T$  entre deux valeurs consécutives données par Touloukian et Ho.
  - La diffusivité thermique  $a_T$  est également donnée par Touloukian et Ho. Ils indiquent que les valeurs sur la gamme [300 ; 800] K peuvent être considérées comme exactes à 4 % près et celles entre 800 K et 1200 K à 8 % près. Seule une estimation est donnée pour les températures supérieures. Le même code de couleur est respecté dans notre tableau pour différencier les valeurs connues avec une incertitude satisfaisante et celles estimées. Comme pour la conductivité thermique, nous supposons une évolution linéaire avec  $T$  entre les points donnés par ce rapport.
  - La masse volumique  $\rho$  présentée dans ce tableau est obtenue par le calcul :  

$$\rho = \frac{k_T}{a_T c_p}$$
  - L'enthalpie volumique  $h$  est elle aussi obtenue par le calcul :  $h = \rho c_p T + f_l \rho L_f$  où l'enthalpie de fusion est donnée par Vargel [242]  $L_f = 3,97 \cdot 10^5 \text{ J kg}^{-1}$  et  $f_l$  est la fraction de liquide. Elle vaut 0 pour le solide, 1 pour le liquide et augmente linéairement avec l'enthalpie volumique pendant le changement de phase.
  - La pression de vapeur saturante du liquide présentée dans ce tableau est celle calculée par la loi polynomiale donnée par l'équation (2.1.15) où  $A = 5,911$  et  $B = -16211 \text{ K}$  sont données par Alcock *et al.* [4]. Pour le solide, Alcock *et al.*

Température (K)	$k_T$ (W m <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> )		$a_T$ (10 <sup>-5</sup> m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> )	
	Touloukian & Ho	Notre modèle	Touloukian & Ho	Notre modèle
3600	105,00	106,15	-	-
4500	-	-	4,97	4,96
5000	81,80	81,90	4,73	4,71
5500	71,90	71,68	-	-
6000	61,40	61,90	4,02	4,00
6500	50,50	50,70	-	-
7000	39,20	39,90	2,97	2,95

TABLE 2.2.1 – Conductivité et diffusivité thermiques de l’aluminium : comparaison entre notre modèle et les données de Touloukian et Ho [227].

donnent l’expression suivante :

$$\log P_{vap} = 5,006 + A + \frac{B}{T} + C \log T \quad (2.2.13)$$

avec  $A = 9,459$ ,  $B = -17342$  K et  $C = -0,7927$ . Nous avons procédé à une linéarisation au point de fusion entre la valeur pour l’état solide et celle pour l’état liquide.

Les valeurs obtenues justifient pleinement que l’on considère l’évaporation de la phase solide négligeable comme nous l’avons précisé dans la section 2.2.1 présentant le cas test.

L’avant dernière ligne du tableau D.2 rappelle les valeurs du point critique données dans notre article [166]. La dernière ligne regroupe les estimations données par Touloukian et Ho pour  $k_T$  et  $a_T$ .

- Dans le **tableau D.4**, nous avons supposé que les valeurs constantes données par le site de la NASA concernant la capacité thermique molaire à pression constante pour le liquide sont erronées. Nous les avons donc recalculées pour qu’elles soient cohérentes avec celles de la masse volumique au point critique et nous avons supposé une évolution linéaire de  $C_p$  avec la température entre le point de fusion et le point critique.

De plus, l’évolution de l’enthalpie volumique en fonction de la température n’étant pas strictement croissante compte tenu des estimations proposés par Touloukian et Ho, nous avons très légèrement modifié quelques valeurs comme l’illustre le tableau 2.2.1.

Ces modifications permettent d’obtenir une évolution régulière de l’enthalpie volumique du liquide avec la température qui peut être exprimée simplement sous la forme du polynôme de degré 2 suivant :

$$h(T) = -1,779 \cdot 10^2 T^2 + 2,479 \cdot 10^6 T + 1,124 \cdot 10^9 \quad (2.2.14)$$

Cette interpolation est utilisée dans le modèle B (les valeurs sont répertoriées dans le tableau D.6). La figure 2.2.1 permet d’illustrer les modifications apportées à  $h(T)$  par la prise en compte des hypothèses précédentes concernant  $c_p$ ,  $k_T$  et  $a_T$ .

Enfin, nous avons quelque peu modifié la forme de l’équation proposée par Alcock *et al.* concernant la pression de vapeur saturante à l’état liquide. En effet, l’équation (2.1.15) avec  $A = 5,911$  et  $B = -16211$  K n’est valable que sur la

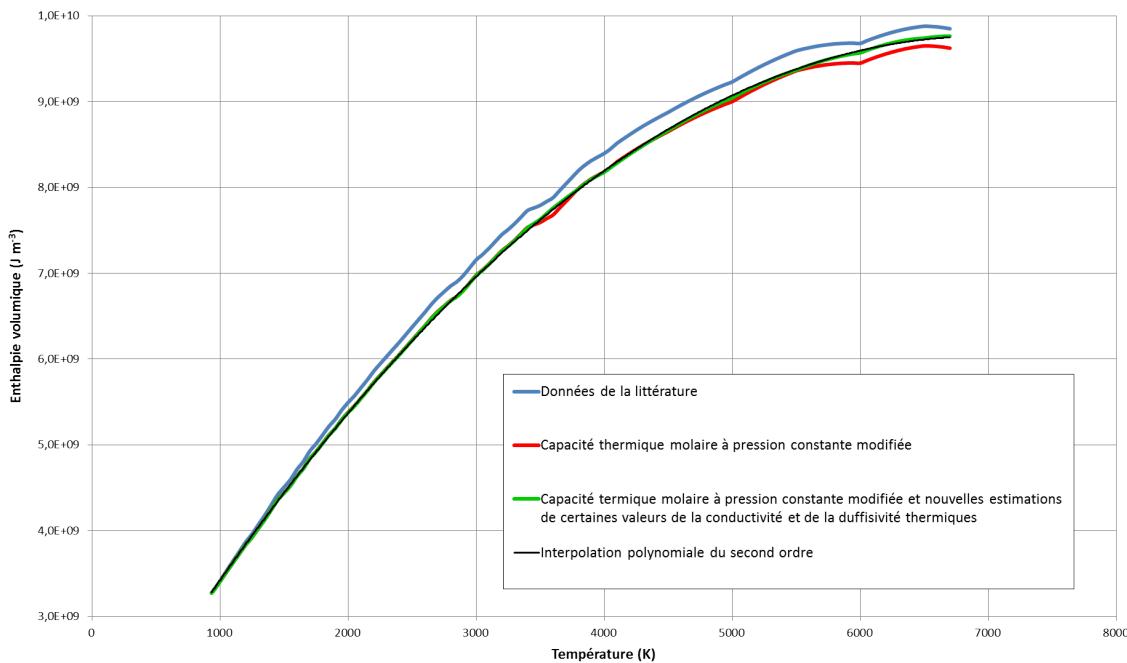


FIGURE 2.2.1 – Influence des modifications apportées aux données thermodynamiques sur l'évolution de l'enthalpie volumique en fonction de la température.

gamme de température [ $T_f$  ; 1800 K]. D'autre part, disposant d'une estimation de la pression critique, nous avons préféré proposer une nouvelle équation peu différente de celle de Alcock *et al.* de telle sorte que la dérivée en tout point soit continue. Nous avons pris soin d'estimer les coefficient  $A$  et  $B$  de l'équation (2.1.15) pour que les valeurs de la pression de vapeur saturante à faible température soient proches de celles obtenues par Alcock *et al.* et pour que la température de saturation à pression atmosphérique soit peu différente de celle trouvée dans la littérature  $T_{eb} \approx 2790$  K [138]. Nous obtenons :

$$\log P_{vap} = 5,006 + A + \frac{B}{T} \quad (2.2.15)$$

avec  $A = 6,044$  et  $B = -16365$  K. Les deux courbes sont reportées sur la figure 2.2.2.

Connaissant désormais l'évolution des propriétés thermophysiques de l'aluminium avec la température, nous pouvons traiter l'équation de bilan d'énergie dans la cible.

## 2.2.3 Équation de bilan en enthalpie

Comme précisé dans la section 2.2.1, nous discrétisons la cible en un nombre suffisant de mailles. Dans ce modèle, nous préférons résoudre l'équation de bilan en enthalpie volumique notée  $h$ , plutôt que l'équation de Fourier en raison du changement de phase solide → liquide se produisant au sein de l'échantillon. Le lien entre les différentes grandeurs thermophysiques à température ou à enthalpie volumique données figure dans le tableau de l'annexe D. Le fait de résoudre l'équation de bilan d'enthalpie volumique et non pas l'équation de Fourier n'entraîne aucune modification sur la modélisation de la phase plasma et plus particulièrement sur celle des phénomènes d'évaporation.

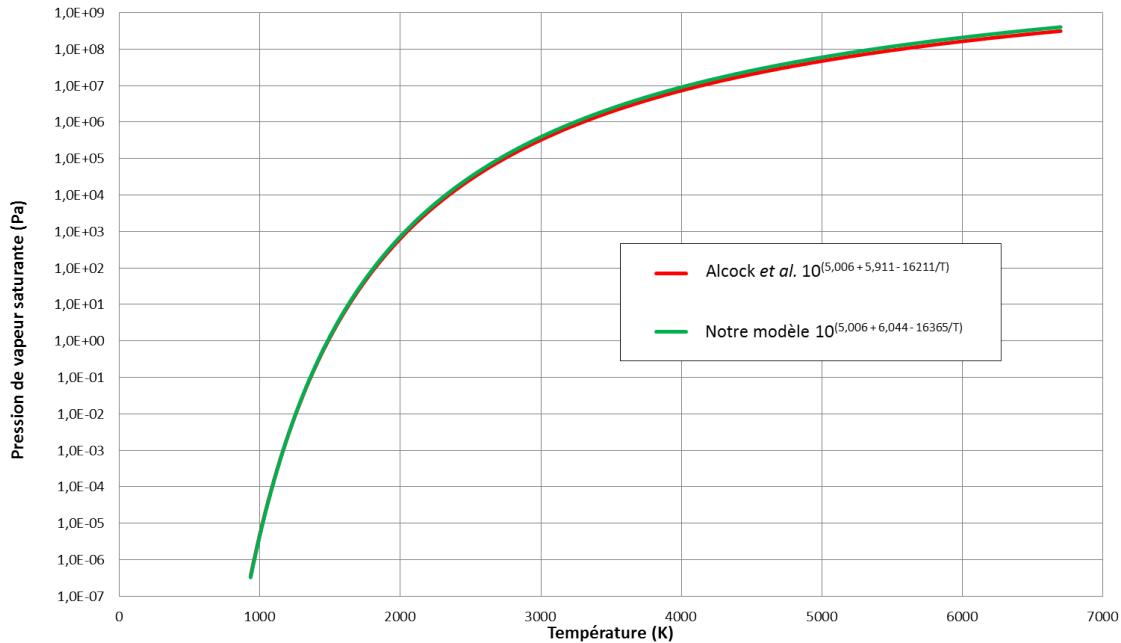


FIGURE 2.2.2 – Pression de vapeur saturante de l’aluminium liquide en fonction de la température. Comparaison des équations (2.1.15) et (2.2.15).

L’équation de bilan de l’énergie s’écrit [49] :

$$\rho \frac{dh^*}{dt} = \frac{dp}{dt} + \Phi + \operatorname{div} \left( k_T \vec{\operatorname{grad}} T \right) \quad (2.2.16)$$

où  $h^*$  est l’enthalpie massique et  $\Phi$  la fonction de dissipation. Les gradients les plus forts étant observés selon la direction de propagation de l’impulsion laser (cf. figure 2.1.1), l’équation précédente devient :

$$\rho \frac{dh^*}{dt} = \frac{dp}{dt} + \Phi + \frac{\partial}{\partial z} \left( k_T \frac{\partial T}{\partial z} \right) \quad (2.2.17)$$

Bien que  $\rho$  varie avec la température, nous avons fait l’hypothèse que l’échantillon ne se dilate pas sous l’effet de son échauffement et que la pression y reste constante. Ainsi :

- $\frac{d}{dt} = \frac{\partial}{\partial t} + \vec{v} \cdot \vec{\operatorname{grad}} = \frac{\partial}{\partial t}$  car  $\vec{v} = \vec{0}$
- $\frac{\partial \rho}{\partial t} = 0$

L’enthalpie volumique vaut :  $h = \rho h^*$ . Par conséquent, l’équation (2.2.17) s’écrit :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( k_T \frac{\partial T}{\partial z} \right) \quad (2.2.18)$$

Écrite sous cette forme, l’équation de bilan n’est pas intégrable. Nous avons donc choisi d’en simplifier la forme. Sur l’intervalle de température considéré, nous remarquons que  $\frac{dh}{dT} \approx \rho c_p$  en dehors du changement de phase. Ainsi :

$$\frac{\partial h}{\partial t} \approx \frac{\partial}{\partial z} \left( \frac{k_T}{\rho c_p} \frac{\partial h}{\partial z} \right) = \frac{\partial}{\partial z} \left( a_T \frac{\partial h}{\partial z} \right) \quad (2.2.19)$$

où  $a_T = \frac{k_T}{\rho c_p}$  est la diffusivité thermique.

De plus, la surface de la cible est éclairée par le rayonnement laser. Nous prenons en compte cette condition à la limite qui traduit la continuité de la densité de flux en  $z = 0$  au temps  $t$  :

$$\left( a_T \frac{\partial h}{\partial z} \right)_{0,t} = \varphi_{las}(t) \quad (2.2.20)$$

De plus, nous supposons la cible semi-infinie, ce qui se traduit par la condition à la limite suivante :

$$\left( a_T \frac{\partial h}{\partial z} \right)_{-\infty,t} = 0 \quad (2.2.21)$$

Ces deux conditions à la limite peuvent être réécrites et intégrées à l'équation (2.2.19) pour la première et la dernière maille de la cible. L'équation (2.2.19) en considérant les conditions à la limites (2.2.20) et (2.2.21) peut être résolue à l'aide d'un schéma numérique implicite par la méthode du gradient conjugué préconditionné (PCG). En effet, ces équations permettent d'écrire une matrice tri-diagonale qui peut alors conduire à une résolution plus précise et beaucoup plus rapide par la méthode PCG que par une méthode de Gauss-Jordan classique. Afin d'uniformiser le calcul, dans le cas du modèle B la résolution de l'équation pour chaque maille est directement réalisée par le solveur DVODE au même titre que la résolution des équations sur les températures  $T_e$  et  $T_A$  et les équations relatives aux 107 espèces considérées.

\* \* \*

Ce paragraphe consacré aux méthodes numériques employées pour résoudre les équations explicitées précédemment conclut cette seconde partie consacrée à la description des phénomènes physiques. La partie suivante a trait aux résultats de modélisation dans les conditions des cas-tests spécifiées précédemment mais également dans des conditions particulières afin d'étudier l'influence de plusieurs paramètres.



# Troisième partie

## Résultats



# Chapitre 3.1

## Résultats modèle découplé A

Le modèle A offre la possibilité d'étudier le comportement du plasma dans différentes conditions. Dans ce chapitre, nous présentons les résultats concernant le cas-test et des résultats pour des configurations particulières permettant de discuter l'influence des données sources utilisées. Ainsi, nous discuterons des influences sur le comportement général du plasma des paramètres suivants :

- de la densité de flux du laser,
- de la température de surface,
- du choix de la section efficace d'ionisation multiphotonique
- de quelques processus collisionnels et radiatifs

### 3.1.1 Conditions du cas-test

#### 3.1.1.a Températures

Le cas-test considère une température de surface maximale  $T_S^{max} = 2900$  K, une section efficace d'ionisation photonique  $\sigma_1 = 10^{-20}$  m<sup>2</sup> et une densité de flux laser maximale  $\varphi_{las}^{max} = 2.10^{13}$  W m<sup>-2</sup>. De plus, ce modèle prend en compte le différents processus collisionnels-radiatifs décrits dans la section 2.1.4 tels que :

- l'ionisation multiphotonique,
- le Bremsstrahlung inverse,
- le Bremsstrahlung thermique,
- l'émission spontanée,
- l'ionisation par impact électronique,
- l'excitation par impact électronique et
- les collisions élastiques.

La figure 3.1.1 montre l'évolution temporelle des températures du plasma compte tenu des différents phénomènes élémentaires passés en revue dans la section 2.1.4 ainsi que des conditions du cas-test exposées dans la section 2.1.1. Cette figure montre également l'évolution de la densité de flux laser afin de juger de la simultanéité des phénomènes. La température électronique (en rouge) évolue sur près de 7000 K en 1 ns, puis elle diminue de quelques centaines de Kelvin pendant 2 ns. Dans le même temps, la température des lourds passe de 1000 K à environ 3500 K. Lorsque la densité de flux est maximale, c'est-à-dire aux alentours de  $5.10^{-9}$  s, une légère augmentation de la température des électrons a lieu. Après  $6.10^{-9}$  s, l'écart de température entre les électrons et les lourds tend à diminuer sur le long terme majoritairement sous l'influence des collisions élastiques.

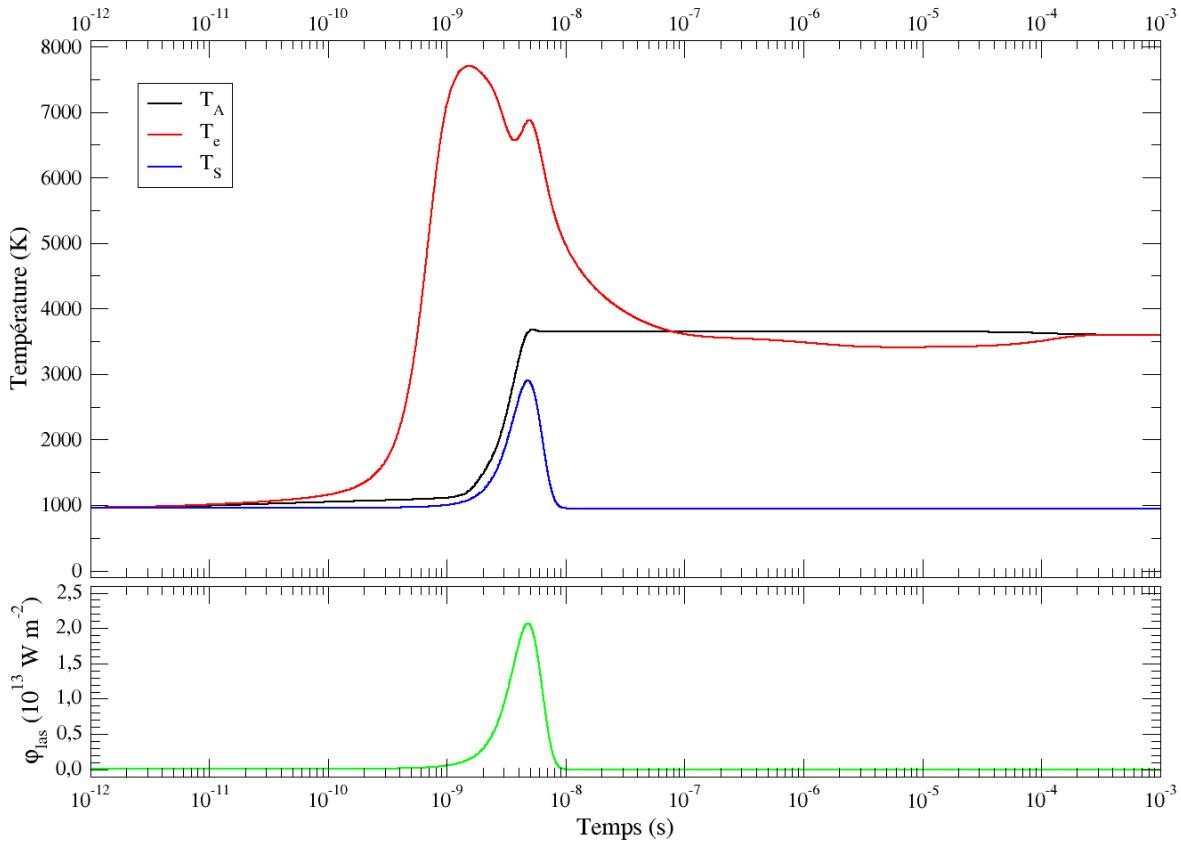


FIGURE 3.1.1 – En haut, évolution temporelle des températures du plasma : la température électronique  $T_e$  courbe rouge, la température des lourds  $T_A$  courbe noire et la température de surface  $T_S$  courbe bleue. En bas, évolution temporelle de la densité de flux laser  $\varphi_{las}$  (courbe verte)

Notons toutefois qu'autour de  $7.10^{-8}$  s, la température des électrons devient inférieure à celle des lourds. Cet écart croît jusqu'à atteindre près de 250 K à  $6.10^{-6}$  s puis diminue pour enfin atteindre la thermalisation à  $4.10^{-4}$  s pour une température de thermalisation de 3600 K. Nous interpréterons plus loin ces caractéristiques.

La figure 3.1.2 montre quant à elle l'influence des types de processus élémentaires sur l'évolution de  $T_e$  et  $T_A$  durant le phénomène. Nous rappelons que chaque type de processus élémentaire induit une vitesse de chauffage  $\Theta$  dont la liste et la forme ont été données en section 2.1.5. De plus, l'évolution des températures est décrite par l'équation :

$$\frac{dT_{e,A}}{dt} = \sum_{proc} \pm 10^{\log|\Theta_{e,A}(proc)|} \quad (3.1.1)$$

où *proc* correspond à l'un des dix processus considérés.

On constate que l'évaporation est le processus le plus important aux temps très court ( $t < 10^{-10}$  s) qui conduit à l'augmentation des deux températures. Cependant, notons que ce terme est inversement proportionnel à l'épaisseur  $Z$  de la couche plasma. Il est clair qu'aux temps courts cette couche est très mince et il est important de garder à l'esprit qu'à ces échelles de temps, l'hypothèse utilisée pour quantifier cette grandeur est discutable<sup>1</sup>.

1. Nous supposons que l'épaisseur du plasma croît à la vitesse d'agitation thermique des lourds. Ainsi,  $Z(t = 10^{-12} s) \approx 6.10^{-7} m$

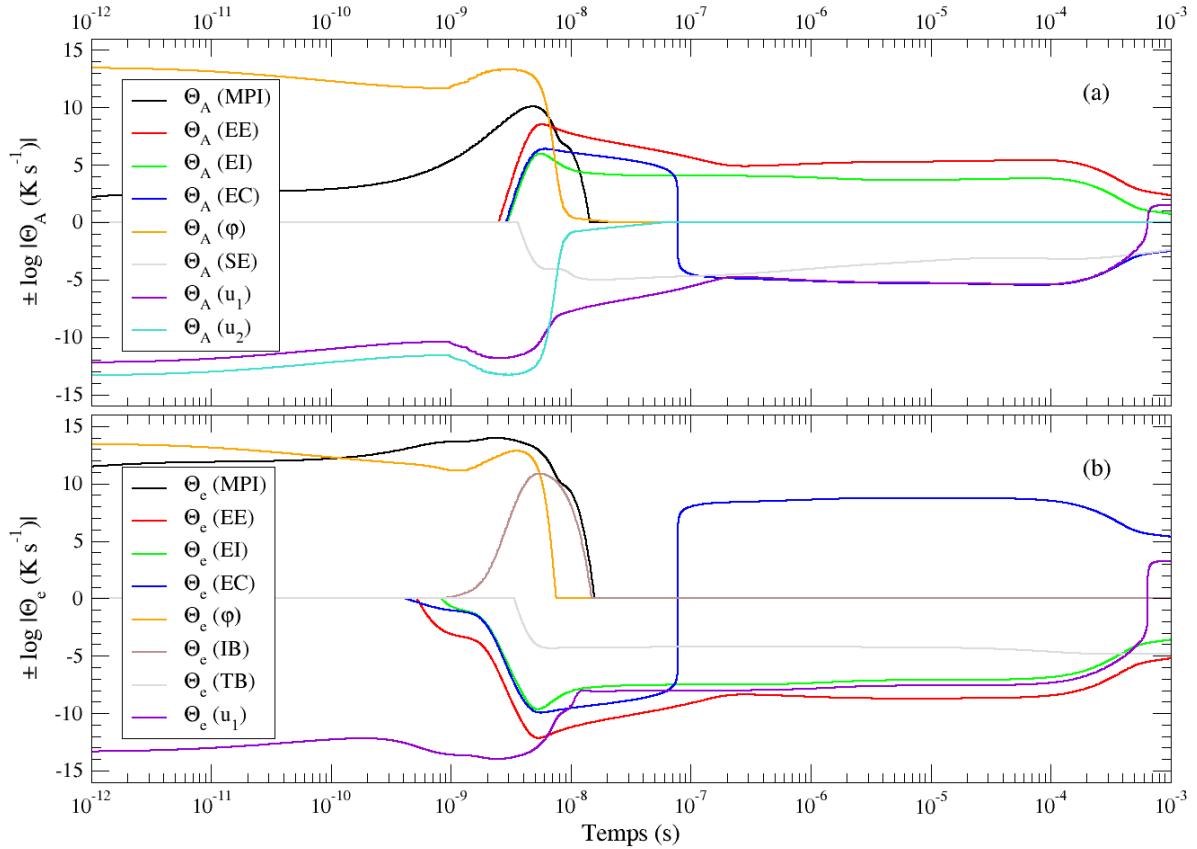


FIGURE 3.1.2 – Évolution temporelle de l'influence des types de processus élémentaires sur la température des lourds (a) et des électrons (b).

A ces temps courts, les termes de stockages de l'énergie  $u_1$  et  $u_2$  sont également importants et tendent à ralentir l'augmentation de température dans les deux cas.

Le processus d'ionisation multiphotonique n'a qu'une influence modérée sur l'évolution de  $T_A$  au contraire de  $T_e$  pour laquelle il est majoritaire entre  $10^{-10}$  s et  $10^{-8}$  s. Les influences de l'excitation et l'ionisation par impact électronique évoluent de pair dans les deux cas. Elles débutent plus tôt (avant la première nanoseconde) et sont négatives dans le cas des électrons alors que dans le cas des lourds elles sont positives et débutent vers  $3.10^{-9}$  s. Concernant les processus électroniques, le Bremsstrahlung inverse n'apparaît qu'après  $10^{-9}$  s, croît rapidement jusqu'à  $5.10^{-9}$  s, c'est-à-dire quand la densité de flux laser est maximale puis diminue jusqu'à devenir négligeable après  $1.5.10^{-8}$  s. Les processus radiatifs tels que l'émission spontanée et le Bremsstrahlung thermique n'apparaissent que très tardivement (autour de  $4.10^{-9}$  s) et tendent à réduire légèrement les deux températures mais nous pouvons d'ores et déjà affirmer que leurs influences sont négligeables sur le comportement global du plasma. Enfin, cette figure montre que le processus de collisions élastiques est prédominant lors de la phase de recombinaison. Ces collisions commencent à influencer les températures avant le maximum de l'impulsion laser. Leur influence s'inverse brutalement vers  $7.10^{-8}$  s c'est-à-dire dès que  $T_A$  est supérieure à  $T_e$ . Cette influence compense celle des processus inélastiques et tend à thermaliser le plasma.

La confrontation des figures 3.1.1 et 3.1.2 permet de comprendre en détail les diverses évolutions des températures et de distinguer deux étapes au comportement du plasma :

- une **phase de création** aux temps courts ( $t < 5.10^{-9}$  s).

Durant cette phase, la température des électrons  $T_e$  augmente dans un premier

temps en raison de l'évaporation et surtout de l'ionisation multiphotonique<sup>2</sup>. Ce processus contribue à la fois à la création des électrons mais aussi à l'augmentation de la température électronique. L'ionisation multiphotonique étant le processus le plus important à la création du plasma, l'influence de sa section efficace sera étudiée dans la section 3.1.2. Au cours de cette phase de création, la température des lourds  $T_A$  n'augmente que très modérément sous l'effet de l'évaporation des espèces à la température de la surface. L'analyse de la figure 3.1.2 montre clairement que cet échauffement est faible du fait des deux termes de stockage d'énergie de translation  $u_1$  et d'excitation et d'ionisation  $u_2$  qui sont, comme nous l'avons vu dans les sous-sections 2.1.4.i et 2.1.4.j, proportionnels aux variations de densités des espèces. Entre  $2.10^{-9}$  s et  $4.10^{-9}$  s, les collisions élastiques et inélastiques électrons/ions exercent une influence maximale. Dès lors, ils induisent une diminution de la température électronique au profit des lourds.

Pour cette phase de création, notons également que le Bremsstrahlung inverse induit une légère augmentation de  $T_e$  entre  $4.10^{-9}$  s et  $5.10^{-9}$  s, c'est-à-dire lorsque la densité de flux laser est la plus forte. Dans les conditions du cas-test et plus précisément à ce niveau de densité de flux laser, le Bremsstrahlung inverse ne joue un rôle que très modéré dans l'échauffement des électrons contrairement à ce que peut laisser penser la lecture des article de Bogaerts *et al.* [22, 23].

- A cette phase de création succède une **phase de recombinaison** ( $t > 5.10^{-9}$  s). L'apport d'énergie diminue et les températures tendent à s'équilibrer sur le long terme principalement sous l'effet des collisions élastiques mais également par l'intermédiaire des processus inverses des phénomènes collisionnels. Cependant, l'étude de la figure 3.1.2 montre que dans les conditions du cas-test, aucun processus inverse ne devient prédominant. En effet, aucune contribution relative à un processus inélastique ne change de signe. Les processus inverses n'ont donc pour effet que de réduire les contributions. La seule contribution changeant de signe est celle relative aux collisions élastiques. Il est assez difficile d'interpréter ce résultat en raison des fortes non linéarités et des forts couplages intervenant dans la situation physique étudiée. L'inversion de température dont ce changement de signe témoigne n'apparaît pas dans certaines conditions comme nous le verrons dans la section 3.1.2.

La figure 3.1.2 montre tout de même la forte réactivité des collisions élastiques à l'inversion de température et sa forte influence bien que l'écart thermique soit faible. Enfin, nous pouvons d'ores et déjà remarquer que les processus radiatifs tels que le Bremsstrahlung thermique (pour les électrons) et l'émission spontanée (pour les lourds) ont une influence négligeable sur le comportement du plasma. Cette faible influence sera détaillée dans la section 3.1.2.

Comme nous l'avons vu précédemment, dans les conditions du cas-test, l'équilibre thermique est atteint à une température de 3600 K. Cependant cette température tend à diminuer sous l'effet des processus radiatifs. Pour conclure sur l'étude de l'évolution de la température, nous constatons que la figure 3.1.1 laisse présager un faible degré d'ionisation du plasma. En effet, durant la phase de recombinaison, la température des lourds n'évolue que de quelques dizaines de Kelvin, alors que celle des électrons varie sur plus de 3000 K. Par conséquent, on peut supposer que la densité de lourds est bien supérieure à celle des électrons de telle sorte que les collisions électrons/lourds n'affectent que très légèrement la température du gaz de lourds. L'étude de l'évolution des densités en fonction du temps

---

2. La différence d'énergie entre le niveau virtuel atteint par ionisation multiphotonique et le niveau fictif de notre regroupement est récupérée par l'électron sous forme d'énergie cinétique.

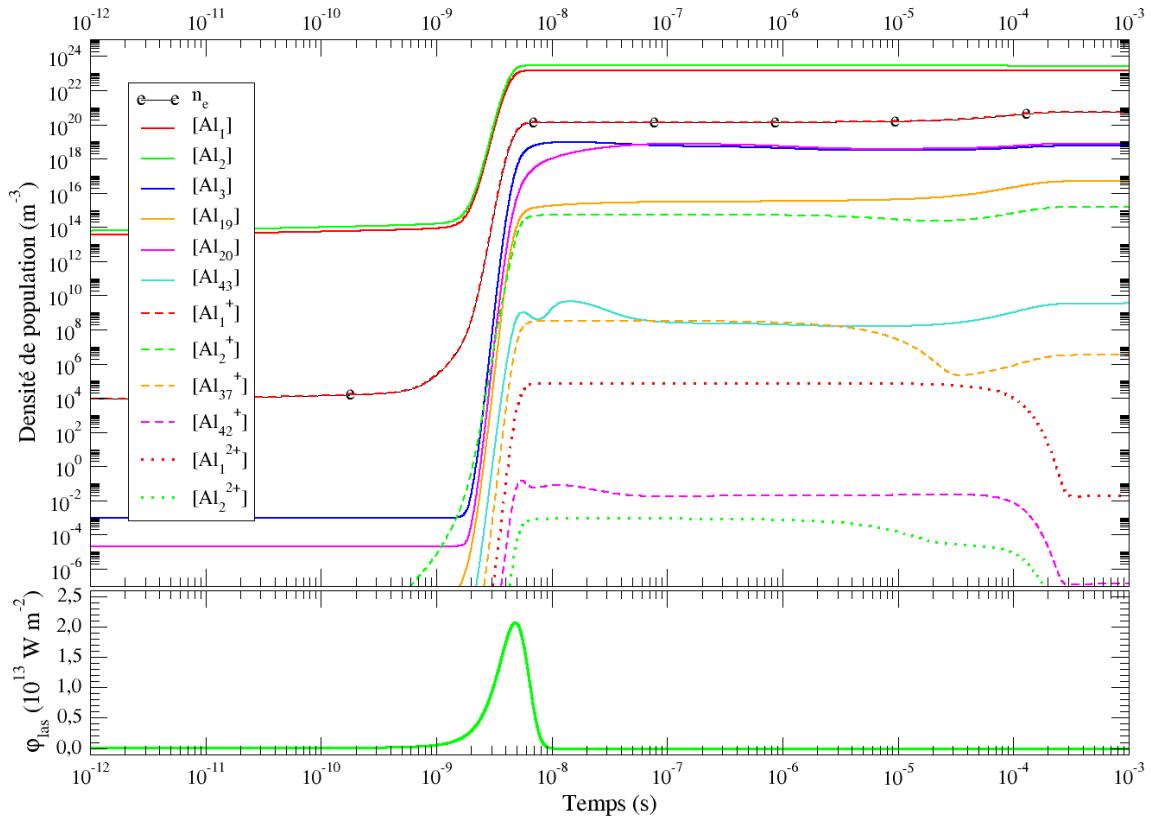


FIGURE 3.1.3 – Évolution temporelle des densités de population du plasma : états excités de Al (traits pleins), de  $\text{Al}^+$  (traits tiretés), de  $\text{Al}^{2+}$  (traits pointillés) et électrons (symbole e). L'évolution de la densité de flux laser est reportée sur le graphique inférieur.

effectuée dans la sous-section suivante permettra de confirmer cette hypothèse.

### 3.1.1.b Densités

L'évolution temporelle des densités d'espèces du plasma est aussi très intéressante à étudier puisqu'elle permet de connaître le degré d'ionisation à chaque instant, de savoir quelle est l'espèce majoritaire et surtout de connaître la valeur de la densité électronique.

La figure 3.1.3 illustre l'évolution des densités de population de plusieurs espèces présentes dans le plasma en fonction du temps. On constate qu'aux temps courts, il ne s'agit encore que d'un gaz avec une forte densité de l'état fondamental et de son premier état excité, de l'ordre de  $10^{13} \text{ m}^{-3}$ . Ce gaz est également composé d'une très faible quantité d'électrons et d'ions  $\text{Al}^+$  sur le niveau fondamental (quelques  $10^4 \text{ m}^{-3}$ ). La présence des espèces  $\text{Al}_3$  et  $\text{Al}_{20}$  est uniquement due au calcul à l'équilibre pour initier le calcul. Ces deux espèces respectivement à 3,143 et 3,608 eV sont présentes en très faible quantité dans un plasma d'aluminium à 950 K à l'équilibre. Il n'est donc pas intéressant de les considérer à ces temps courts. De plus, on peut constater que ces deux espèces n'évoluent pas avant  $t = 10^{-9} \text{ s}$ . En effet, comme nous l'avons vu dans la sous-section 2.1.4.a, seuls  $\text{Al}_1$ ,  $\text{Al}_2$ ,  $\text{Al}_1^+$  et les électrons s'évaporent de la surface. Ainsi,  $\text{Al}_3$  et  $\text{Al}_{20}$  n'ont aucune raison d'évoluer avant que les processus inélastiques ne viennent les peupler.

A partir de  $10^{-9} \text{ s}$ , les autres espèces émergent et toutes les densités augmentent fortement en quelques nanosecondes. Ainsi, les densités de  $\text{Al}_1$  et de  $\text{Al}_2$  passent de  $10^{14}$  à quelques  $10^{23} \text{ m}^{-3}$  entre  $10^{-9} \text{ s}$  et  $6 \cdot 10^{-9} \text{ s}$ , la densité électronique et celle de  $\text{Al}_1^+$

augmentent jusqu'à atteindre  $10^{20} \text{ m}^{-3}$ .

On peut remarquer le comportement intéressant de la densité du niveau  $\text{Al}_{43}$  qui, après avoir augmenté pendant les 5 premières nanosecondes, diminue légèrement entre  $6.10^{-9} \text{ s}$  et  $9.10^{-9} \text{ s}$  avant d'atteindre son niveau maximum à  $1,5.10^{-8} \text{ s}$ . Un comportement similaire est observé pour l'état  $\text{Al}_{42}^+$ . Ce qui porte à croire que ce comportement est spécifique au dernier état excité d'une espèce. Cependant, cette remarque ne peut pas être confirmée et la question reste donc ouverte.

Enfin, après de faibles variations des densités entre  $5.10^{-8} \text{ s}$  et  $5.10^{-6} \text{ s}$ , les niveaux de haute énergie se dépeuplent et, dans le même temps, les niveaux de basse énergie se peuplent.

Afin de mieux comprendre l'évolution de ces densités, nous étudions l'influence des processus sur plusieurs espèces telles que les électrons, les fondamentaux et les premiers états excités de  $\text{Al}$ ,  $\text{Al}^+$  et  $\text{Al}^{2+}$  ainsi que le deuxième état excité de l'atome<sup>3</sup> en analysant les figures 3.1.4, 3.1.5, 3.1.6 et 3.1.7.

Sur la figure 3.1.4 on constate qu'aux temps courts, l'évaporation est le processus prédominant pilotant la densité électronique et celle de  $\text{Al}_1$ . Ces influences tendent à légèrement diminuer jusqu'à  $10^{-9} \text{ s}$  sous l'effet de l'épaisseur  $Z$  du plasma qui augmente. A partir du moment où la température de surface augmente sensiblement, l'influence de l'évaporation devient importante. L'influence de ce processus semble suivre l'évolution temporelle de la température de surface. Après  $10^{-8} \text{ s}$ , la progression linéaire qui était visible aux temps courts reprend. On peut remarquer l'influence du terme  $f_{evap}$  en comparant ces deux courbes. En effet, à  $10^{-9} \text{ s}$  l'évaporation permet d'augmenter la vitesse de peuplement de  $\text{Al}_1$  de  $10^{22} \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$  à  $10^{32} \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$  entre  $10^{-9} \text{ s}$  et  $5.10^{-9} \text{ s}$ . Dans le même temps, la vitesse de peuplement de la densité électronique passe de seulement  $10^{13} \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$  à  $10^{28} \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$  ce qui montre bien que le terme  $f_{evap}$  est plus faible à  $10^{-9} \text{ s}$  qu'à  $5.10^{-9} \text{ s}$ .

L'influence de l'ionisation multiphotonique est très importante pour la création des électrons aux temps courts et contribue à dépeupler le niveau fondamental de l'atome. Il est intéressant de noter que jusqu'à  $8.10^{-9} \text{ s}$  les deux contributions  $\Xi_e (\text{MPI})$  et  $\Xi_A (\text{MPI})$  se compensent<sup>4</sup>.

Le comportement de la courbe concernant  $\Xi_e (\text{IE})$  est quelque peu similaire. Elle est d'abord nulle aux temps courts. Puis, après avoir émergé à  $10^{-9} \text{ s}$ , le terme de production électronique est approximativement opposé à celui du niveau  $\text{Al}_1$  jusqu'à  $10^{-8} \text{ s}$ . Entre cet instant et  $6.10^{-4} \text{ s}$ , les deux termes évoluent faiblement et à partir de  $6.10^{-4} \text{ s}$  la recombinaison par impact électronique devient prédominante par rapport à l'ionisation par impact électronique et  $\Xi_e (\text{IE})$  change de signe.

L'influence de l'excitation par impact électronique sur  $\text{Al}_1$  est intéressante puisqu'elle contribue à son dépeuplement entre  $5.10^{-10} \text{ s}$  et  $3.10^{-8} \text{ s}$ . Puis la désexcitation depuis les autres niveaux devient prédominante et permet le peuplement de  $\text{Al}_1$  jusqu'à  $5.10^{-4} \text{ s}$ . A cet instant et durant seulement  $10^{-4} \text{ s}$ ,  $\Xi_e (\text{EE})$  change à nouveau de signe avant de revenir à une valeur de  $10^{20} \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$ .

L'émission spontanée est le processus qui démarre le plus tardivement pour  $\text{Al}_1$  et entre  $1,5.10^{-9} \text{ s}$  et  $3.10^{-4} \text{ s}$ , elle permet le peuplement du niveau. La variation de population

3. Le premier état excité étant fortement couplé avec le niveau fondamental, il est possible de considérer que l'atome d'aluminium dispose d'une structure fine, c'est-à-dire d'un niveau fondamental à 0 eV et d'un niveau excité très proche à 0,014 eV. De ce fait, on peut considérer que le premier état excité est le niveau  $\text{Al}_3$ .

4. C'est-à-dire jusqu'à ce qu'apparaisse la rupture de pente sur la courbe concernant l'influence de l'ionisation multiphotonique sur les électrons.

maximale qui découle de ce processus est de  $10^{21} \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$  à  $7.10^{-9} \text{ s}$ .

Concernant la figure 3.1.5, l'influence de l'évaporation sur  $\text{Al}_2$  est identique à celle de  $\text{Al}_1$ . L'ionisation multiphotonique induit un dépeuplement des niveaux  $\text{Al}_2$  et  $\text{Al}_3$  depuis le début de l'interaction jusqu'à  $1.5.10^{-8} \text{ s}$ . Les fluctuations visibles sur la courbe relative à  $\text{Al}_3$  résultent des erreurs numériques<sup>5</sup>.

L'ionisation par impact électronique joue un rôle similaire sur  $\text{Al}_2$  et sur  $\text{Al}_1$ . Son influence sur le niveau  $\text{Al}_3$  est quelque peu différente mais reste cependant négative tout au long du processus. L'excitation par impact électronique a quant à elle une influence très différente pour les deux espèces considérées. En effet, pour  $\text{Al}_2$  elle contribue au dépeuplement du niveau à partir de  $5.10^{-10} \text{ s}$ . Pour  $\text{Al}_3$  au contraire, elle contribue d'abord au peuplement entre  $5.10^{-10} \text{ s}$  et  $1.5.10^{-8} \text{ s}$  puis de nouveau entre  $1.5.10^{-5} \text{ s}$  et  $3.10^{-4} \text{ s}$  et elle induit un dépeuplement du niveau entre  $1.5.10^{-8} \text{ s}$  et  $1.5.10^{-5} \text{ s}$  puis de  $3.10^{-4} \text{ s}$  jusqu'à la fin de l'évolution.

La variation de population induite par l'émission spontanée de  $\text{Al}_2$  est positive entre  $5.10^{-9} \text{ s}$  et  $2.10^{-8} \text{ s}$  et elle est négative entre  $1.5.10^{-9} \text{ s}$  et  $5.10^{-9} \text{ s}$  et entre  $2.10^{-8} \text{ s}$  et  $4.10^{-4} \text{ s}$ . Concernant  $\text{Al}_3$ , elle est positive de  $1.5.10^{-8} \text{ s}$  à la fin du phénomène.

La figure 3.1.6 rend compte de l'influence des divers processus sur les états de  $\text{Al}^+$ . Pour ce qui est de l'évaporation, de l'ionisation multiphotonique et de l'ionisation par impact électronique, les évolutions concernant  $\text{Al}_1^+$  sont identiques à celles relatives aux électrons.

Sur le graphique concernant  $\text{Al}_2^+$  (figure 3.1.6), la variation de population de l'ionisation multiphotonique est plus modérée. Elle est visible entre  $10^{-10} \text{ s}$  et  $2.10^{-8} \text{ s}$  et atteint au maximum  $10^{23} \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$ . La vitesse de peuplement de  $\text{Al}_2^+$  par excitation par impact électronique est égale à l'opposée de celle sur  $\text{Al}_1^+$ . Celle de l'ionisation par impact électronique sur le premier état excité de  $\text{Al}^+$  débute à  $1.5.10^{-9} \text{ s}$  et est positive jusqu'à  $9.10^{-8} \text{ s}$  puis entre  $1.5.10^{-5} \text{ s}$  et  $1.5.10^{-4} \text{ s}$ . Elle est négative le reste du temps.

L'émission spontanée pour les deux espèces induit un peuplement des niveaux à une vitesse maximale de  $10^{20} \text{ m}^{-3} \text{ s}^{-1}$  à  $6.10^{-9} \text{ s}$ . Pour des temps plus longs, l'influence est inférieure tout en étant relativement conséquente.

Enfin, la figure 3.1.7 montre l'influence des processus sur les deux premiers états de  $\text{Al}^{2+}$ . On constate que les influences sont nettement moins importantes que pour les autres espèces. L'ionisation multiphotonique n'intervient qu'entre  $2.10^{-9} \text{ s}$  et  $1.5.10^{-8} \text{ s}$  de manière positive. L'influence de l'excitation par impact électronique s'oppose pour  $\text{Al}_1^{2+}$  et  $\text{Al}_2^{2+}$ . Pour le niveau fondamental, elle est d'abord négative entre  $4.10^{-9} \text{ s}$  et  $3.10^{-8} \text{ s}$  puis positive jusqu'à  $2.10^{-5} \text{ s}$ . L'ionisation par impact électronique n'influence que très peu  $\text{Al}_2^{2+}$  entre  $4.10^{-9} \text{ s}$  et  $10^{-8} \text{ s}$  mais elle influence bien plus le niveau  $\text{Al}_1^{2+}$  : elle est en effet tout d'abord positive entre  $3.10^{-9} \text{ s}$  et  $1.5.10^{-8} \text{ s}$  puis négative jusqu'à  $3.10^{-4} \text{ s}$  pour enfin contribuer très faiblement au peuplement du niveau. L'émission spontanée n'influence quant à elle pas du tout ces deux espèces.

La confrontation des 5 graphiques précédents (à savoir l'évolution des densités de population ainsi que l'influence que peuvent avoir les processus sur ces évolutions) permet de tirer les conclusions suivantes :

- l'ionisation multiphotonique est le processus majoritaire pilotant la création d'ions et d'électrons et le dépeuplement des différents niveaux de l'atome aux temps courts ( $t < 5.10^{-9} \text{ s}$ ).

---

5. Les densités de populations des niveaux excités sont très petites à ces échelles de temps. De ce fait, la résolution par DVODE du système d'équations différentielles présenté dans le chapitre 2.1 peut conduire à quelques fluctuations.

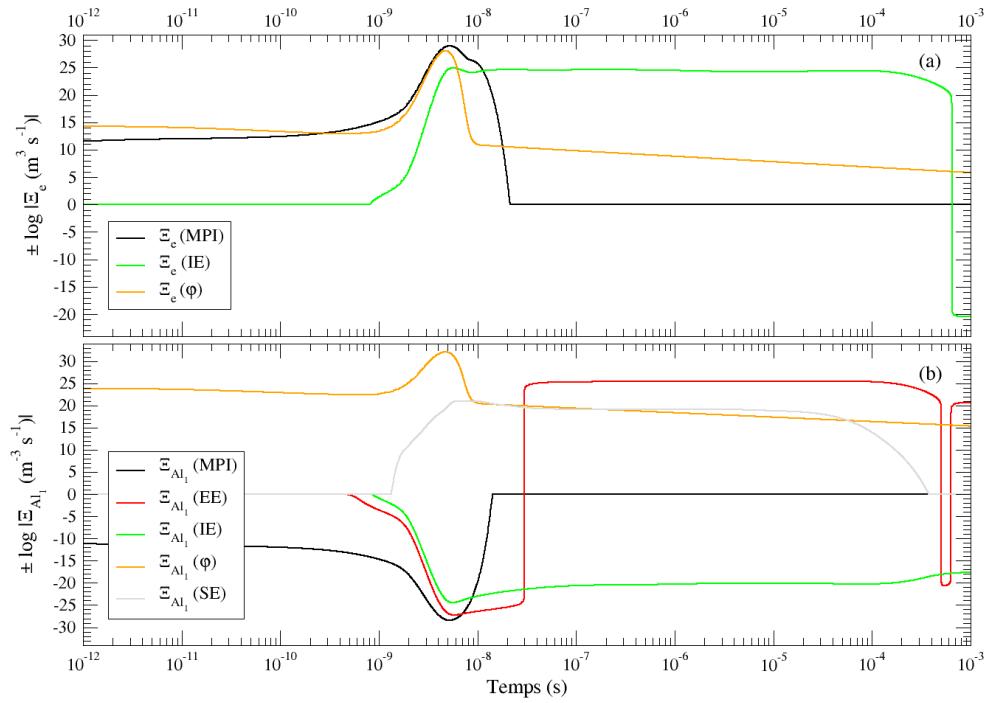


FIGURE 3.1.4 – Influence des processus en fonction du temps sur l'évolution de la densités électronique (a) et de la densité de Al<sub>1</sub> (b).

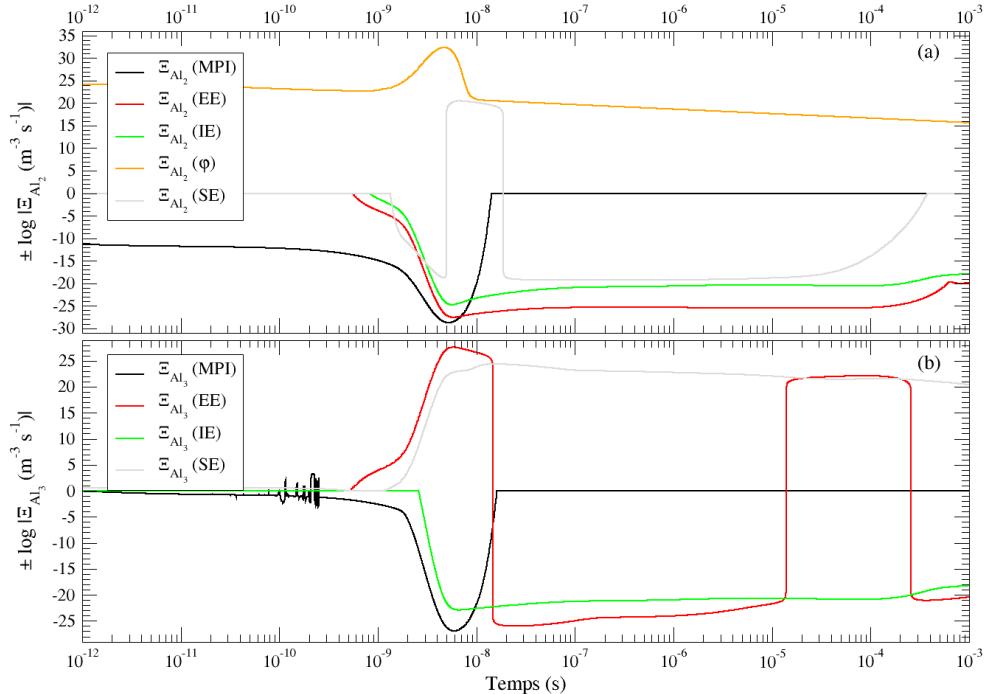


FIGURE 3.1.5 – Influence des processus en fonction du temps sur l'évolution des densités de populations de Al<sub>2</sub> (a) et de Al<sub>3</sub> (b).

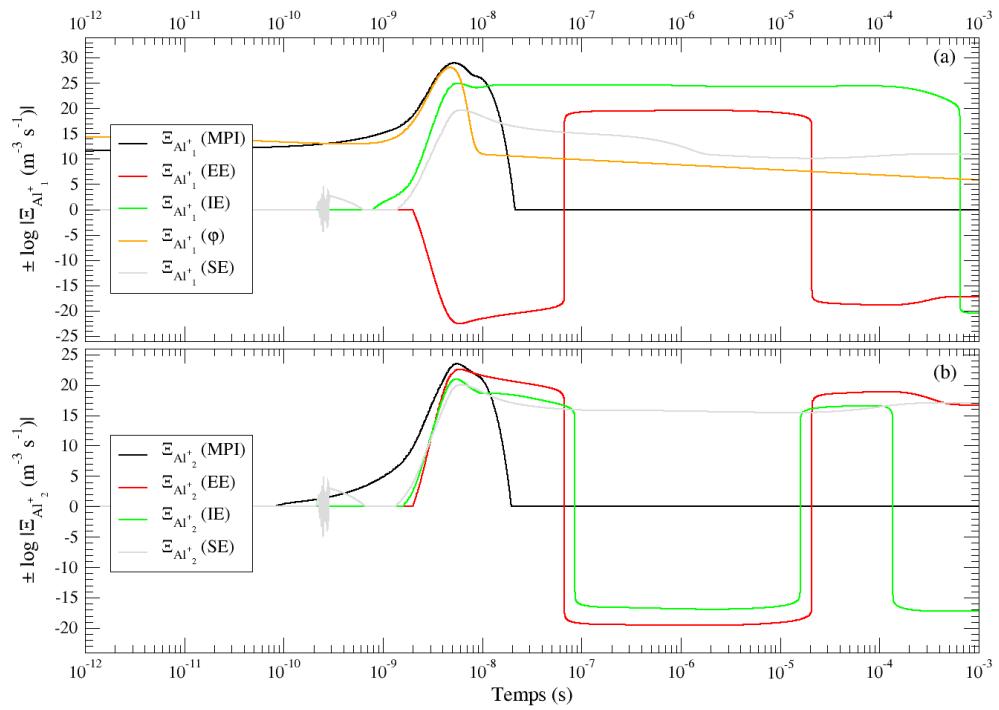


FIGURE 3.1.6 – Influence des processus en fonction du temps sur l'évolution des densités de populations de  $Al_1^+$  (a) et de  $Al_2^+$  (b).

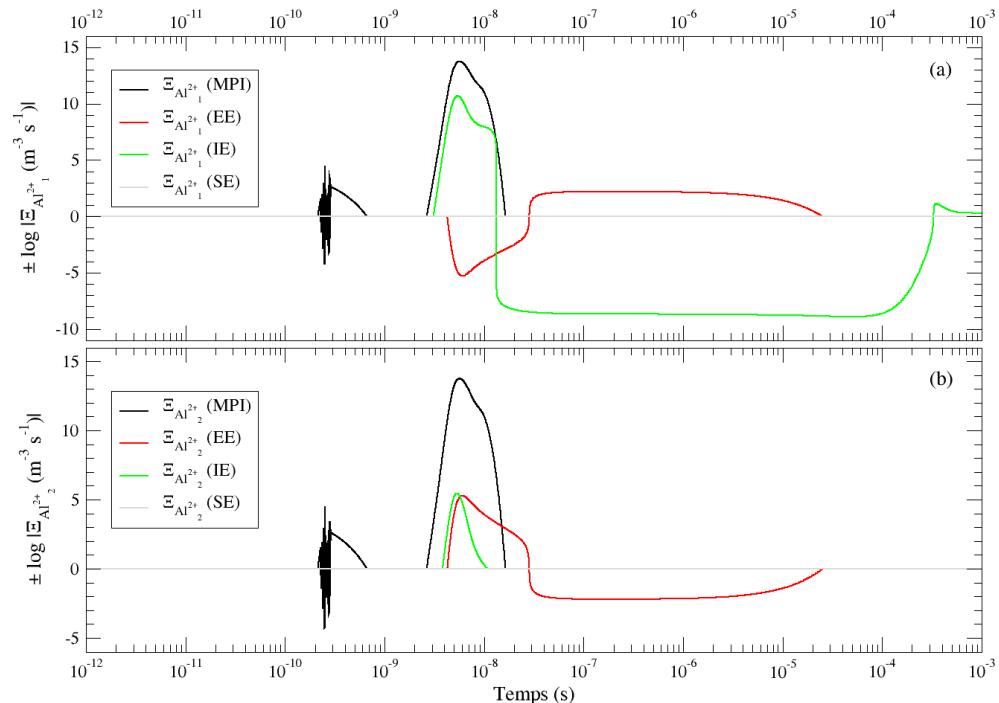


FIGURE 3.1.7 – Influence des processus en fonction du temps sur l'évolution des densités de populations de  $Al_1^{2+}$  (a) et de  $Al_2^{2+}$  (b).

- L'ionisation par impact électronique permet d'accroître les populations ioniques jusqu'à  $1,5 \cdot 10^{-8}$  s et de dépeupler les niveaux de l'atome.
- La recombinaison à trois corps, bien que présente, n'est pas suffisante pour être visible sur les différentes figures présentées ici.

De plus, la cascade de recombinaison par désexcitation par impact électronique est mise en évidence sur le graphique 3.1.5. En effet, le niveau  $\text{Al}_3$  semble se dépeupler par désexcitation sur les niveaux de plus basse énergie entre  $1,5 \cdot 10^{-8}$  s et  $1,5 \cdot 10^{-6}$  s puis se peupler par la désexcitation des niveaux qui lui sont supérieurs et enfin, se dépeupler de nouveau à partir de  $3 \cdot 10^{-4}$  s. De même, nous pouvons constater la cascade radiative sur le graphique du haut de cette figure. Tout d'abord, on observe un dépeuplement de  $\text{Al}_2$  au profit de  $\text{Al}_1$  avant  $5 \cdot 10^{-9}$  s, puis une désexcitation des niveaux supérieurs aboutissant sur  $\text{Al}_2$  par émission spontanée jusqu'à  $2 \cdot 10^{-8}$  s et enfin un nouveau dépeuplement de  $\text{Al}_2$  à long terme.

Après étude de l'évolution des densités de population, nous nous proposons d'étudier les températures d'excitation. Cette étude étant basée sur les graphiques de Boltzmann, nous les présentons dans la sous-section suivante.

### 3.1.1.c Graphiques de Boltzmann

Si l'espèce X est en équilibre d'excitation selon la température  $T_{exc}$ , alors :

$$\frac{[X_i]}{g_i} = \frac{\sum_i [X_i]}{Z_X} \exp\left(-\frac{E_i}{k_B T_{exc}}\right) \quad (3.1.2)$$

où  $Z_X$  est sa fonction de partition et  $[X_i]$  sa densité de population sur le niveau  $E_i$  de poids statistique  $g_i$ . En échelle semi-logarithmique, les évolutions du rapport  $\frac{[X_i]}{g_i}$  en fonction

de  $E_i$  sont alors linéaires dont la pente vaut  $-\frac{1}{k_B T_{exc}}$ . Le graphique obtenu est appelé graphique de Boltzmann. Puisque l'équilibre d'excitation résulte du couplage imposé par un partenaire de collision privilégié, la température d'excitation doit alors être égale à la température de translation du partenaire. Étudier le graphique de Boltzmann permet donc d'étudier indirectement la dynamique collisionnelle du plasma : c'est pourquoi nous nous y sommes intéressé.

La figure 3.1.8 montre l'évolution à différents instants de la distribution des niveaux d'énergie de l'atome sur les configurations de cœur  $3s^2$  et  $3s3p(3P)$ . On constate qu'à  $10^{-10}$  s la distribution du rapport  $\frac{[X_i]}{g_i}$  pour la configuration de cœur  $3s^2$  est alignée. Ceci indique que la configuration est à l'équilibre d'excitation à ces échelles de temps. À  $5 \cdot 10^{-10}$  s, les niveaux de faible énergie ( $E_i \approx 4$  eV) ne sont plus alignés avec ceux de plus grande énergie. Entre  $10^{-9}$  s et  $5 \cdot 10^{-9}$  s, le déséquilibre est évident. Puis, à partir de  $10^{-8}$  s, la distribution tend vers une forme linéaire dont la pente est plus faible que celle observée à  $10^{-10}$  s.

Pour la configuration de cœur  $3s3p(3P)$ <sup>6</sup>, le comportement est sensiblement le même, excepté aux temps courts où le déséquilibre est plus marqué. Notons cependant les formes linéaires obtenues à  $10^{-10}$  s d'une part pour les niveaux entre 7 eV et 9,1 eV et d'autre part pour les niveaux d'énergie supérieure à 9,4 eV. La pente de la droite des moindres carrés

---

6. Dans la suite, la notation  $3s3p$  sera adoptée pour décrire la configuration de cœur  $3s3p(3P)$ .

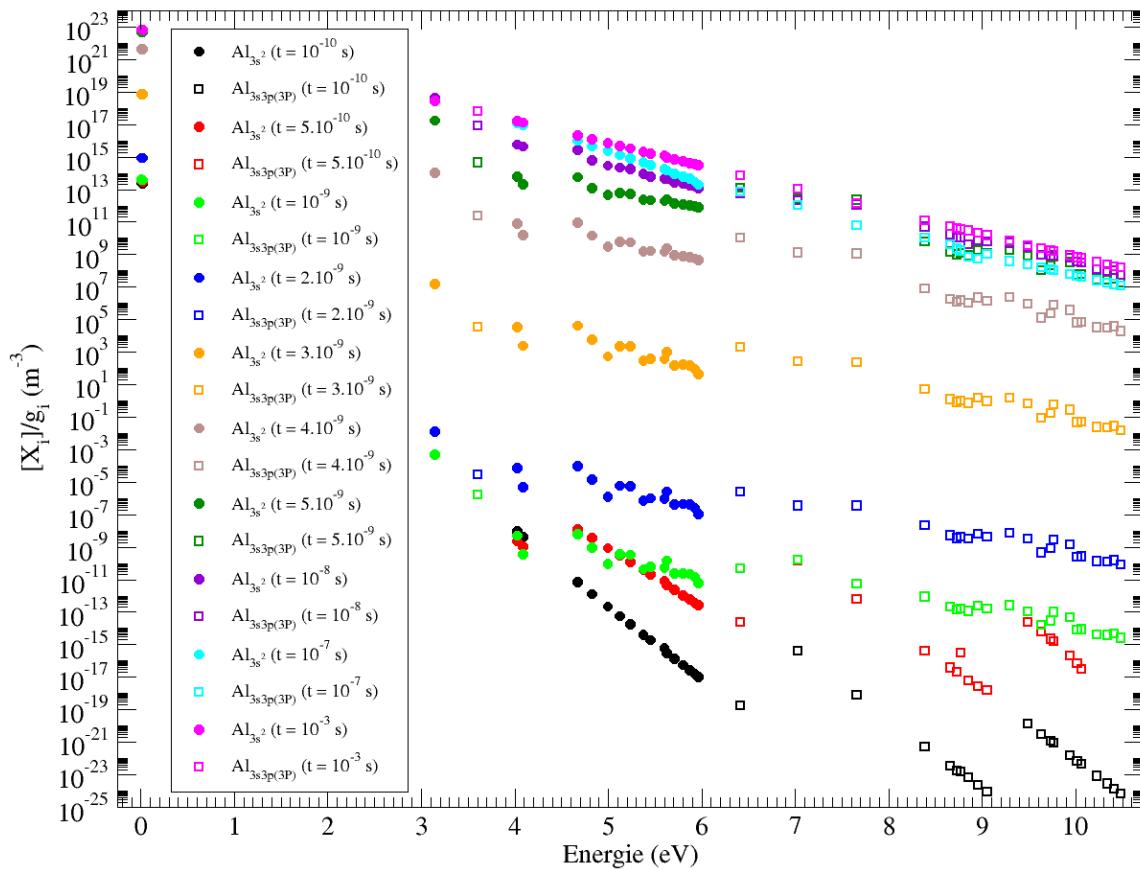


FIGURE 3.1.8 – Graphique de Boltzmann à différents instants pour les deux configurations de cœur de l'atome ( $X \equiv \text{Al}$ )  $3s^2$  (ronds pleins) et  $3s3p$  (carrés évidés).

est très voisine pour les deux groupes de niveau pris séparément mais nous remarquons une brusque rupture de pente autour de 9,3 eV. Le couplage est ensuite meilleur car cette discontinuité a disparu pour  $t = 10^{-9}$  s.

Sur la figure 3.1.9 consacrée aux configurations de cœur  $3s$  et  $3p$  de  $\text{Al}^+$ , nous observons que le déséquilibre est présent dès les premiers instants pour les deux configurations et dure jusqu'à  $t = 10^{-7}$  s. Seules les valeurs calculées pour  $t = 10^{-3}$  s forment une droite bien que quelques niveaux en soient un peu distants. Cette difficulté de couplage d'excitation de ces niveaux très excités doit être relativisée : les densités de population en rapport sont extrêmement faibles.

Enfin, la figure 3.1.10 représente le graphique de Boltzmann pour la configuration  $2p^6$  de  $\text{Al}^{2+}$ . On constate que, bien que l'on puisse tracer une droite des moindres carrés plus ou moins représentative de la distribution, l'équilibre d'excitation n'est jamais atteint pour  $t < 10^{-3}$  s. Là encore ce constat peut être relativisé en remarquant que les densités de population sont extrêmement faibles et n'ont bien évidemment que peu de signification physique.

Suite à l'analyse de ces graphiques de Boltzmann, les points suivants peuvent être retenus :

- La dynamique des états excités de Al est très rapide et dure essentiellement le temps de l'impulsion laser ; ceci est également observé pour  $\text{Al}^+$  et  $\text{Al}^{2+}$ ,
- le couplage est d'autant meilleur que les densités de population sont élevées,
- pour une même espèce, aucune différence de comportement ne semble se manifester

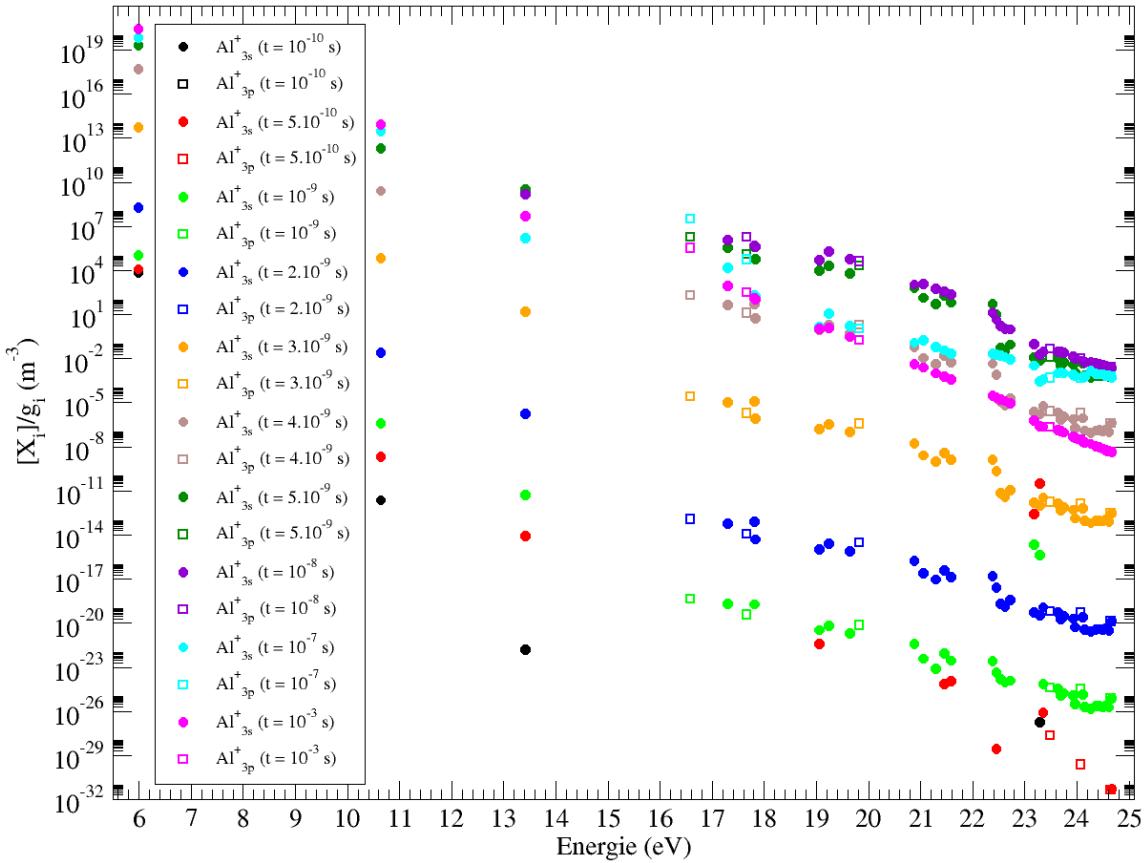


FIGURE 3.1.9 – Graphique de Boltzmann à différents instants pour les deux configurations de cœur 3s (ronds pleins) et 3p (carrés évidés) de l'ion Al<sup>+</sup>.

d'une configuration à l'autre.

Pour préciser les conclusions tirées de l'analyse des graphiques de Boltzmann, nous nous sommes intéressés aux températures d'excitation.

### 3.1.1.d Températures d'excitation

L'équation 3.1.2 permet le calcul de la température d'excitation lorsque l'équilibre d'excitation est atteint. Cependant, lorsque cet équilibre d'excitation n'est pas atteint, on peut néanmoins calculer une température d'excitation pour un groupe de niveau  $\Sigma$  par l'équation :

$$T_{exc}(X_\Sigma) = -\frac{1}{k_B \left[ \frac{d}{dE} \ln \left( \frac{[X]}{g} \right)_\Sigma \right]_{dmc}} \quad (3.1.3)$$

où  $dmc$  signifie que la pente est celle de la droite des moindres carrés. Si l'équilibre d'excitation est atteint, les points représentatifs se répartissent selon une droite et d'un groupe  $\Sigma$  à l'autre  $T_{exc}(X_\Sigma)$  est alors la même. Bien qu'il soit possible de tracer la droite des moindres carrés quelle que soit la répartition des points dans le graphique de Boltzmann, la température d'excitation a donc une signification physique uniquement lorsque le groupe de niveaux considéré est proche de l'équilibre d'excitation. Pour analyser le comportement des espèces de même configuration de cœur, plusieurs d'entre elles ont été choisies comme

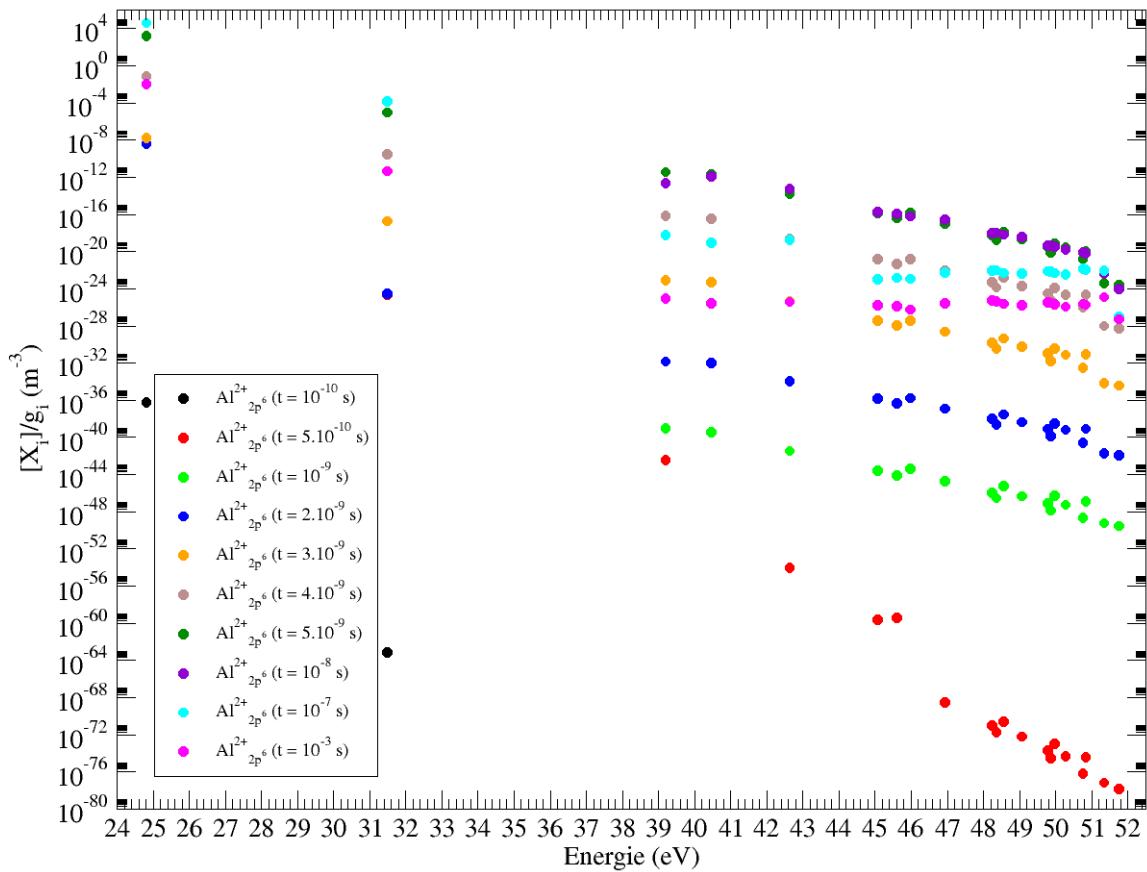


FIGURE 3.1.10 – Graphique de Boltzmann à différents instants pour la configuration de cœur  $2p^6$  de l'ion  $Al^{2+}$ .

groupe  $\Sigma$  pour le calcul de la température d'excitation. Ainsi, la figure 3.1.11 représente l'évolution des 5 configurations de cœur suivantes :

- $3s^2$  (niveaux 6 à 19) de Al
- $3s3p$  (niveaux 25 à 42) de Al,
- $3s$  (niveaux 58 à 79) de  $Al^+$
- $3p$  (niveaux 83 à 85) de  $Al^+$  et
- $2p^6$  (niveaux 99 à 106) de  $Al^{2+}$ .

Pour chaque cas, nous avons considéré un intervalle énergétique réduit. Ainsi, pour la configuration de cœur  $3s^2$ , nous calculons la droite des moindres carrés uniquement pour les niveaux 6 à 19 ce qui correspond aux niveaux d'énergie comprise entre 4,67 eV et 5,96 eV. Pour la configuration de cœur  $3s3p$ , seuls les niveaux d'énergie 25 (8,66 eV) à 42 (10,48 eV) sont considérés. Pour les configurations  $3s$  et  $3p$  de  $Al^+$ , nous ne considérons que les niveaux 58 (22,38 eV) à 79 (24,67 eV) et 83 (23,48 eV) à 85 (24,65 eV) respectivement. Enfin, pour  $Al^{2+}$  et sa configuration  $2p^6$ , la droite des moindres carrés est calculée à partir de la distribution des niveaux 99 (49,78 eV) à 106 (51,75 eV).

La figure 3.1.11 montre que le calcul des températures d'excitation à partir de la droite des moindres carrés conduit à des valeurs qui n'ont aucune signification physique avant  $3.10^{-10}$  s pour la température d'excitation  $T_{3s^2}$ ,  $7.10^{-10}$  s pour la température  $T_{3s3p}$  et à partir de  $10^{-9}$  s pour les deux configurations de cœur de  $Al^+$  :  $T_{3s}$  et  $T_{3p}$ .

La température d'excitation  $T_{3s^2}$  atteint un maximum de 5000 K à  $7.10^{-9}$  s et l'équilibre d'excitation a lieu à  $3.10^{-4}$  s. Concernant la température  $T_{3s3p}$ , l'évolution se fait

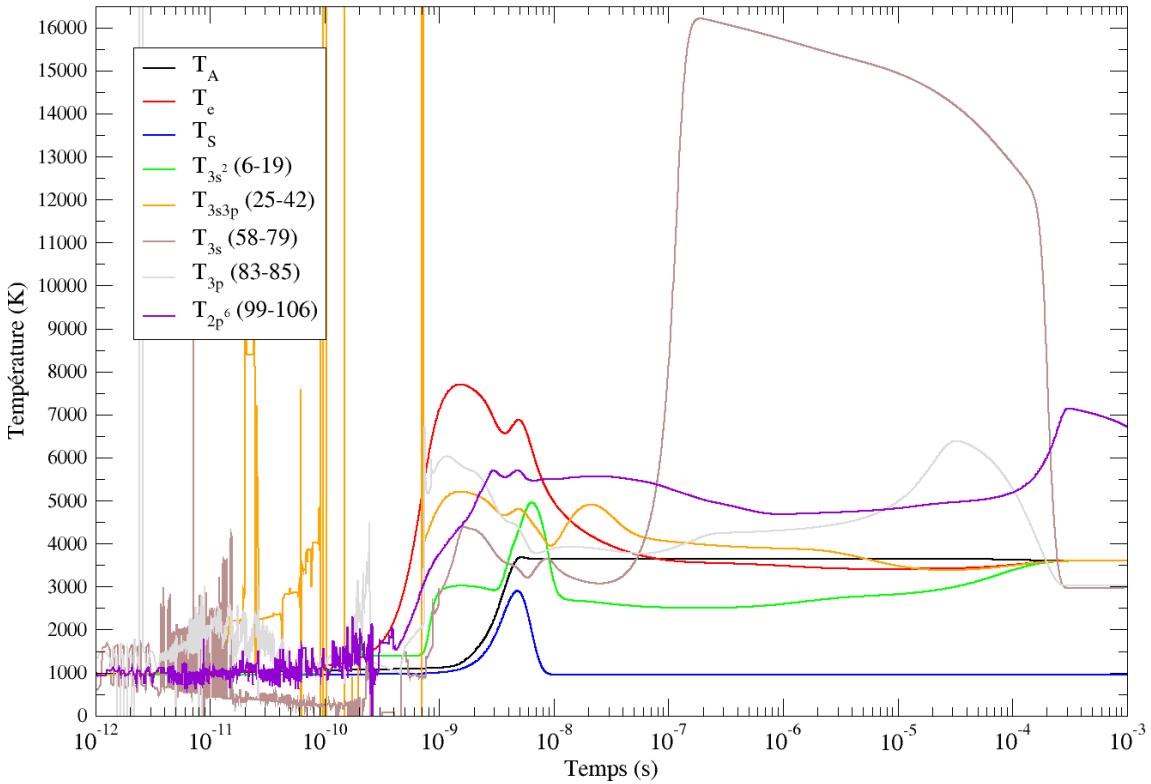


FIGURE 3.1.11 – Évolution temporelle des températures d’excitation. En noir, rouge et bleu sont rappelées les températures respectives des lourds, des électrons et de la surface. En vert et en orange sont représentées les températures d’excitation de Al dans les configurations de cœur  $3s^2$  et  $3s3p$ , en marron et en gris les configurations de cœur  $3s$  et  $3p$  de  $\text{Al}^+$  et en violet la configuration de cœur  $2p^6$  de  $\text{Al}^{2+}$ .

entre 3000 K et 5500 K. L’équilibre d’excitation pour la configuration de cœur  $3s3p$  est atteint environ à  $8.10^{-5}$  s c’est-à-dire avant la configuration de cœur  $3s^2$ . Notons qu’à tout instant la température d’excitation est différente de la température électronique, hormis vers  $10^{-3}$  s. Pour la configuration  $3p$ , les valeurs évoluent au maximum entre 3000 K et 6500 K. De plus, nous observons que l’équilibre d’excitation n’est pas atteint sur les échelles de temps visibles sur le graphique. Cependant, nous avions vu sur la figure 3.1.9 que la distribution semblait relativement bien alignée. Cela justifie l’étude de la température d’excitation calculée par l’équation 3.1.3 : cet outil s’avère bien plus précis qu’un simple examen visuel du graphique de Boltzmann. Pour la configuration  $3s$ , la température d’excitation atteint une valeur maximale de 16300 K à  $2.10^{-7}$  s. Comme pour la configuration  $3p$ , l’équilibre d’excitation se fera à long terme.

Pour la configuration de cœur  $2p^6$  de  $\text{Al}^{2+}$ , bien que la distribution des points vue sur la figure 3.1.10 s’écarte d’une droite, on constate que la température  $T_{2p^6}$  n’a une signification physique qu’à partir de  $5.10^{-10}$  s. Elle atteint d’ailleurs sa valeur maximale de 7200 K assez tardivement ( $3.10^{-4}$  s). Enfin, on constate qu’à  $10^{-3}$  s la température d’excitation est loin de la température électronique, ce qui laisse présager un équilibre d’excitation à plus long terme.

De l’examen de la dynamique des températures d’excitation, il est possible de tirer les conclusions suivantes :

- la température d’excitation constitue un test plus précis de l’équilibre d’excitation

- que ne constitue elle-même une analyse visuelle du graphique de Boltzmann,
- à aucun moment en dehors du très long terme l'équilibre d'excitation n'est réalisé d'une configuration à l'autre où d'une espèce à l'autre : ceci souligne le déséquilibre du plasma. La situation initiale où l'impulsion laser interagit avec la cible correspond donc à une situation très fortement déséquilibrée : la relaxation qui s'ensuit est donc très fortement irréversible d'un point de vue thermodynamique.
  - Les écarts d'énergie les plus grands entre niveaux groupés pour le calcul de la température d'excitation correspondent à environ 2 eV : même pour des intervalles d'énergie finalement petits, le couplage est peu efficace. Il est évident dans ces conditions que le couplage est encore moins bon avec les états fondamentaux de Al et Al<sup>+</sup>. Ainsi, il est clair que dans l'hypothèse où la mesure de la densité de population d'états excités serait réalisée et même dans l'hypothèse où un équilibre d'excitation serait plus ou moins observé, prolonger cet équilibre jusqu'au niveau fondamental pour en déduire sa concentration constituerait une hypothèse très discutable.

### 3.1.2 Influence des paramètres d'entrée

La table 2.1.1 de la page 51 contient les deux paramètres principaux  $\varphi_{las}^{max}$  et  $T_S^{max}$  susceptibles d'influencer le comportement du plasma. Dans la section 3.1.1, nous avons étudié et discuté ce que pouvaient induire les valeurs  $\varphi_{las}^{max} = 2.10^{13} \text{ W m}^{-2}$  et  $T_S^{max} = 2900 \text{ K}$  sur le comportement du plasma. Ces deux paramètres pouvant varier, nous nous proposons d'étudier leur influence dans cette section.

#### 3.1.2.a Rôle de la densité de flux laser

La densité de flux laser pouvant varier sur plusieurs ordres de grandeur, nous avons fait le choix de ne présenter que quelques conditions. De plus, nous présentons les résultats établis avec les valeurs minimales et maximales que peut prendre la densité de flux laser dans le cadre du respect des hypothèses du modèle. Ainsi, nous nous proposons d'étudier le comportement du plasma pour les quatre densités de flux laser suivantes :

- $\varphi_{las}^{max} = 10^{13} \text{ W m}^{-2}$ ,
- $\varphi_{las}^{max} = 2.10^{13} \text{ W m}^{-2}$  qui correspond à la densité de flux maximale du laser adoptée dans les conditions du cas-test<sup>7</sup>,
- $\varphi_{las}^{max} = 5.10^{13} \text{ W m}^{-2}$  et
- $\varphi_{las}^{max} = 10^{14} \text{ W m}^{-2}$ .

et de comparer les résultats qu'ils induisent à ceux du cas-test.

La figure 3.1.12 montre l'influence que peut avoir une modification de la densité de flux laser sur le comportement du plasma. On constate que plus la densité de flux laser est élevée, plus la température électronique évolue rapidement pour atteindre sa valeur maximale. En effet, dans le cas où  $\varphi_{las}^{max} = 10^{14} \text{ W m}^{-2}$ ,  $T_e$  atteint 7900 K autour de  $6.10^{-10} \text{ s}$  alors qu'il faut attendre  $1.5.10^{-9} \text{ s}$  pour avoir  $T_e = 6700 \text{ K}$  lorsque  $\varphi_{las}^{max} = 10^{13} \text{ W m}^{-2}$ . On assiste donc à une diminution de la valeur maximale de  $T_e$  ainsi qu'à un retard de l'atteinte de cette température lorsque l'on diminue la densité de flux laser. Par ailleurs, la diminution de température entre  $1.5.10^{-9} \text{ s}$  et  $4.10^{-9} \text{ s}$  que nous avions observée dans l'étude du cas-test est plus marquée lorsque la densité de flux est faible. A l'inverse, elle

7. Rappelons que le cas-test correspond aux conditions de calcul  $T_S^{max} = 2900 \text{ K}$  et  $\sigma_1 = 10^{-20} \text{ m}^2$ .

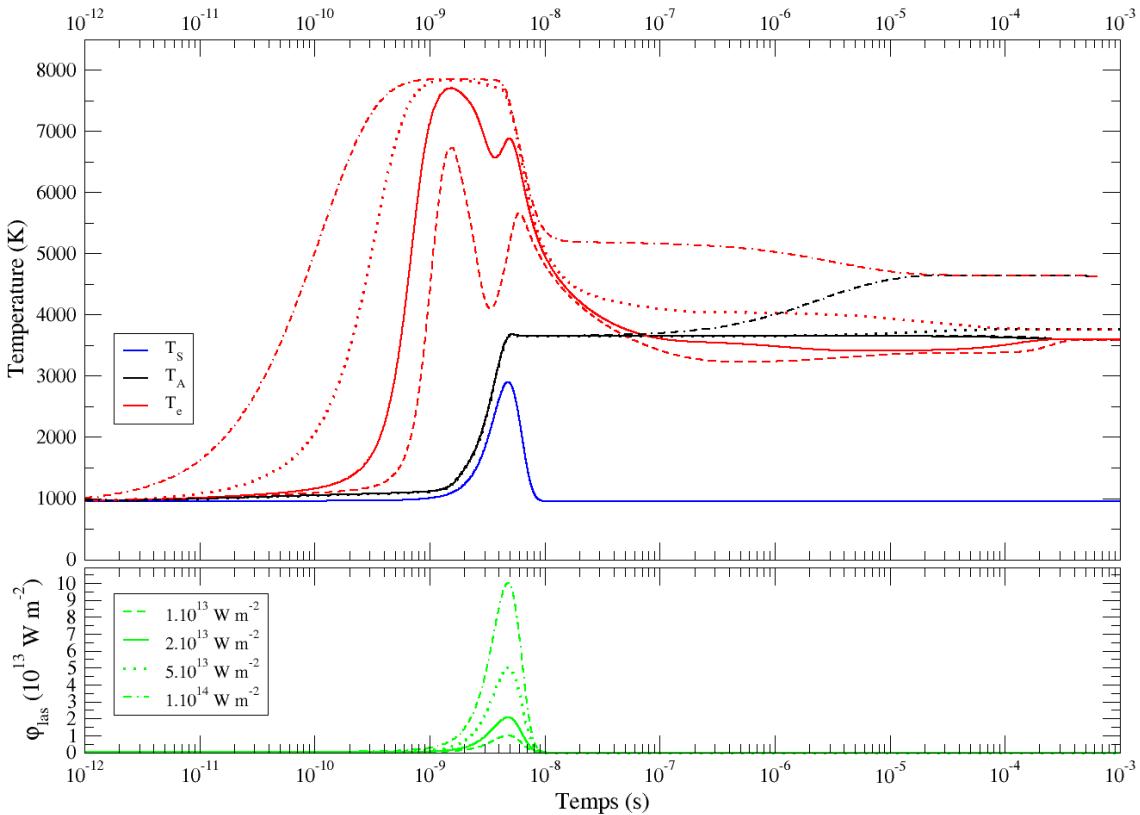


FIGURE 3.1.12 – En haut, évolution temporelle des températures du plasma :  $T_e$  courbe rouge,  $T_A$  courbe noire et  $T_S$  courbe bleue pour 4 densités de flux laser différentes. En bas, évolutions temporelles des densités de flux laser  $\varphi_{las}$ . Par souci de clarté, les styles de traits sont respectés entre les deux graphiques.

est inexisteante pour les fortes densités de flux laser. Il en est de même pour la remontée en température visible entre  $4.10^{-9}$  s et  $6.10^{-9}$  s. Cette figure semble montrer que la température maximale possible pour les électrons avoisine 8000 K. Dans ces conditions, nous pouvons interpréter l'augmentation entre  $4.10^{-9}$  s et  $6.10^{-9}$  s comme un chauffage des électrons par ionisation multiphotonique. Cette interprétation sera discutée dans la sous-section 3.1.3.b. Au cours de cette phase de création, la température des lourds suit la même évolution quelles que soient les conditions de densité de flux laser.

La phase de recombinaison est fortement dépendante de la densité de flux laser puisque nous constatons sur cette figure que :

- plus la densité de flux laser est élevée, plus la thermalisation se produit rapidement (au bout de  $2.10^{-5}$  s lorsque  $\varphi_{las}^{max} = 10^{14} \text{ W m}^{-2}$  et  $3.10^{-4}$  s pour  $\varphi_{las}^{max} = 10^{13} \text{ W m}^{-2}$ ),
- plus la densité de flux laser est forte, plus la température de thermalisation est élevée ( $4700 \text{ K}$  pour  $\varphi_{las}^{max} = 10^{14} \text{ W m}^{-2}$  contre  $3600 \text{ K}$  lorsque  $\varphi_{las}^{max} = 10^{13} \text{ W m}^{-2}$ ).

Enfin, une inversion de température s'opère dans les conditions où  $\varphi_{las}^{max} = 10^{13} \text{ W m}^{-2}$  et  $\varphi_{las}^{max} = 2.10^{13} \text{ W m}^{-2}$  alors qu'elle n'a pas lieu pour les plus fortes densités de flux laser. Nous pouvons d'ores et déjà conclure que pour  $\varphi_{las}^{max} = 5.10^{13} \text{ W m}^{-2}$  et  $\varphi_{las}^{max} = 10^{14} \text{ W m}^{-2}$  la densité électronique est suffisamment importante pour faire évoluer le comportement du gaz de lourds.

Afin d'étudier en détail les différences de comportement du plasma vis à vis des deux conditions extrêmes, nous avons tracé l'influence des processus sur l'évolution des

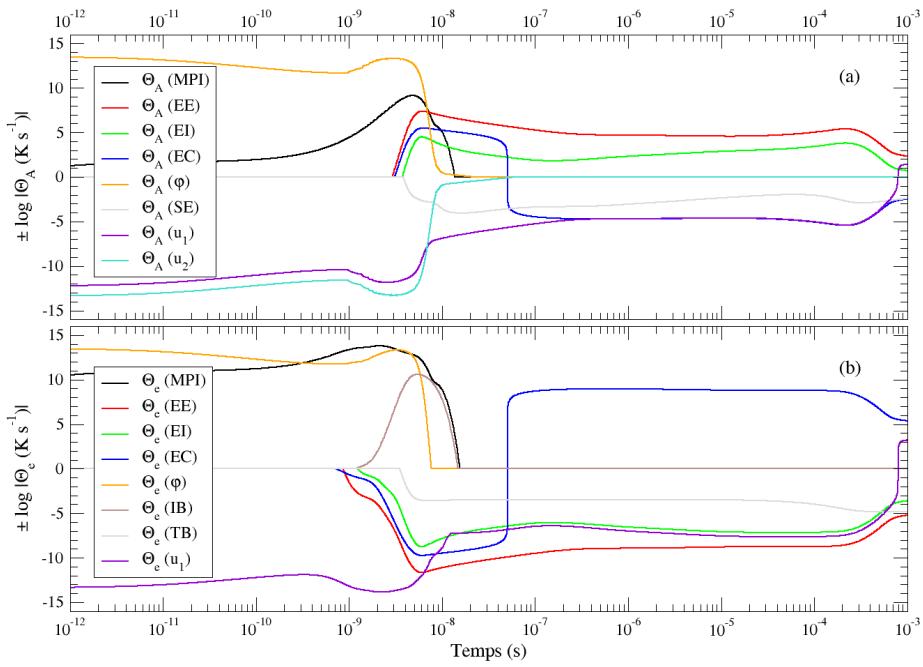


FIGURE 3.1.13 – Évolution temporelle de l'influence des types de processus élémentaires sur la température des lourds (a) et des électrons (b) dans les conditions  $\varphi_{las}^{max} = 10^{13} \text{ W m}^{-2}$  et  $T_S^{max} = 2900 \text{ K}$ .

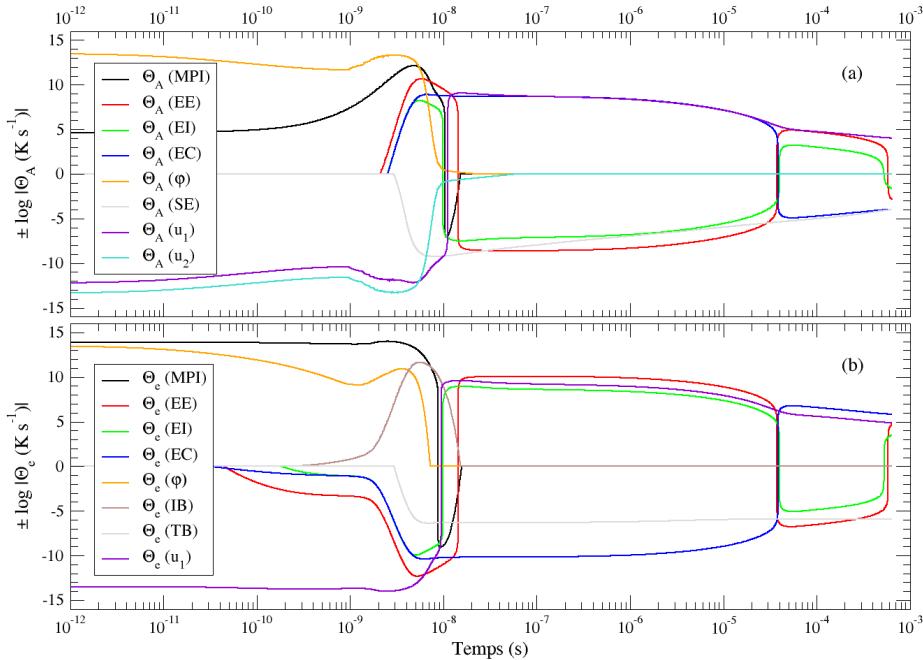


FIGURE 3.1.14 – Évolution temporelle de l'influence des types de processus élémentaires sur la température des lourds (a) et des électrons (b) dans les conditions  $\varphi_{las}^{max} = 10^{14} \text{ W m}^{-2}$  et  $T_S^{max} = 2900 \text{ K}$ .

températures  $T_A$  et  $T_e$  lorsque  $\varphi_{las}^{max} = 10^{13} \text{ W m}^{-2}$  (cf. figure 3.1.13) et lorsque  $\varphi_{las}^{max} = 10^{14} \text{ W m}^{-2}$  (cf. figure 3.1.14). Comme nous pouvions nous y attendre, l'influence de l'évaporation est identique quelle que soit la densité de flux laser,  $T_S^{max}$  étant inchangée. A l'inverse, l'ionisation multiphotonique et le Bremsstrahlung inverse sont d'autant plus importants que la densité de flux laser est élevée. On peut également constater que l'influence des processus sur l'évolution des températures lorsque  $\varphi_{las}^{max} = 10^{13} \text{ W m}^{-2}$  est peu différente de celle obtenue dans les conditions du cas-test. Hormis le Bremsstrahlung inverse, les collisions par impact électronique (EI et EE) et les collisions élastiques qui débutent légèrement plus tardivement (entre  $10^{-9} \text{ s}$  et  $2.10^{-9} \text{ s}$ ), les influences instantanées de chaque processus ne diffèrent quasiment pas de celles du cas-test.

Concernant le cas où  $\varphi_{las}^{max} = 10^{14} \text{ W m}^{-2}$ , l'étude de la figure 3.1.14 est bien plus intéressante. Par exemple, on constate que l'ionisation multiphotonique est clairement le processus majoritaire pilotant l'évolution de  $T_e$  et que son influence sur  $T_A$  est plus prononcée dans ce cas (environ  $10^5 \text{ K s}^{-1}$  contre environ  $10^2 \text{ K s}^{-1}$  pour le cas-test). De plus, à partir de  $10^{-8} \text{ s}$  la recombinaison à trois corps, la désexcitation par impact électronique et le processus inverse de l'ionisation multiphotonique deviennent prédominants sur leurs processus directs respectifs et tendent à diminuer  $T_A$  et à augmenter  $T_e$ . A l'inverse, le terme  $u_1$  du stockage de l'énergie sous forme de translation change lui aussi de signe pour devenir positif : sous son influence, les températures ont tendance à augmenter. Enfin, nous observons que les processus radiatifs (SE et TB) sont bien plus importants dans ce cas de figure et l'émission spontanée devient même le processus prédominant pilotant la diminution de  $T_A$  entre  $10^{-9} \text{ s}$  et  $2.10^{-9} \text{ s}$  ainsi qu'à long terme (pour  $t > 3.10^{-5} \text{ s}$ ) c'est-à-dire lorsque  $T_A \approx T_e$ .

La figure 3.1.15 montre l'évolution des densités de population pour les quatre cas de densité de flux laser. On remarque que l'augmentation de la densité de flux laser n'influe pas sur la densité de population de l'atome sur l'état fondamental indiquant qu'elle est pilotée essentiellement par l'évaporation. A l'inverse, plus la densité de flux laser est élevée, plus les densités des particules chargées sont élevées. Ainsi, lorsque  $\varphi_{las}^{max} = 10^{14} \text{ W m}^{-2}$ , le degré d'ionisation défini par  $\frac{[Al^+]}{[Al^+] + n_e + [Al]}$  du plasma est d'environ  $5.10^{-2}$  alors qu'il ne vaut que  $10^{-4}$  quand  $\varphi_{las}^{max} = 10^{13} \text{ W m}^{-2}$ . Par ailleurs, il est intéressant de noter qu'aux temps longs, les densités électronique et ionique  $Al^+$  semblent tendre vers des valeurs similaires pour les trois cas où  $\varphi_{las}^{max} \leq 5.10^{13} \text{ W m}^{-2}$ .

Enfin, nous étudions l'influence que peut avoir la densité de flux laser sur l'évolution des températures d'excitation des différentes configurations de cœur. Les figures 3.1.16 et 3.1.17 illustrent ces évolutions pour les deux cas  $\varphi_{las}^{max} = 10^{13} \text{ W m}^{-2}$  et  $\varphi_{las}^{max} = 10^{14} \text{ W m}^{-2}$ . On observe des similitudes dans les conditions du cas-test et celle où  $\varphi_{las}^{max} = 10^{13} \text{ W m}^{-2}$ . L'équilibre d'excitation pour les configurations de cœur  $3s^2$  et  $3s3p$  est atteint à  $4.10^{-4} \text{ s}$  et les températures d'excitation pour les configurations de cœur  $3s$  et  $3p$  de  $Al^+$  ont des valeurs similaires à celles obtenues dans les conditions du cas-test à  $t = 10^{-3} \text{ s}$ . Cependant, on peut remarquer quelques différences entre ces deux cas. En effet, les évolutions des températures d'excitation entre  $10^{-9} \text{ s}$  et  $10^{-4} \text{ s}$  sont différentes, notamment pour les configurations de cœur  $3s3p$  et  $3s$  pour lesquelles les variations sont plus importantes pour  $\varphi_{las}^{max} = 10^{13} \text{ W m}^{-2}$ . Par exemple, la valeur maximale de  $T_{3s}$  vaut environ  $16000 \text{ K}$  pour le cas-test et  $27000 \text{ K}$  lorsque  $\varphi_{las}^{max} = 10^{13} \text{ W m}^{-2}$  bien que cette valeur ne soit pas visible sur la figure 3.1.16.

Par ailleurs, lorsque le calcul est mené avec la condition  $\varphi_{las}^{max} = 10^{14} \text{ W m}^{-2}$ , les évolutions des températures d'excitation sont moins importantes que pour le cas-test. De

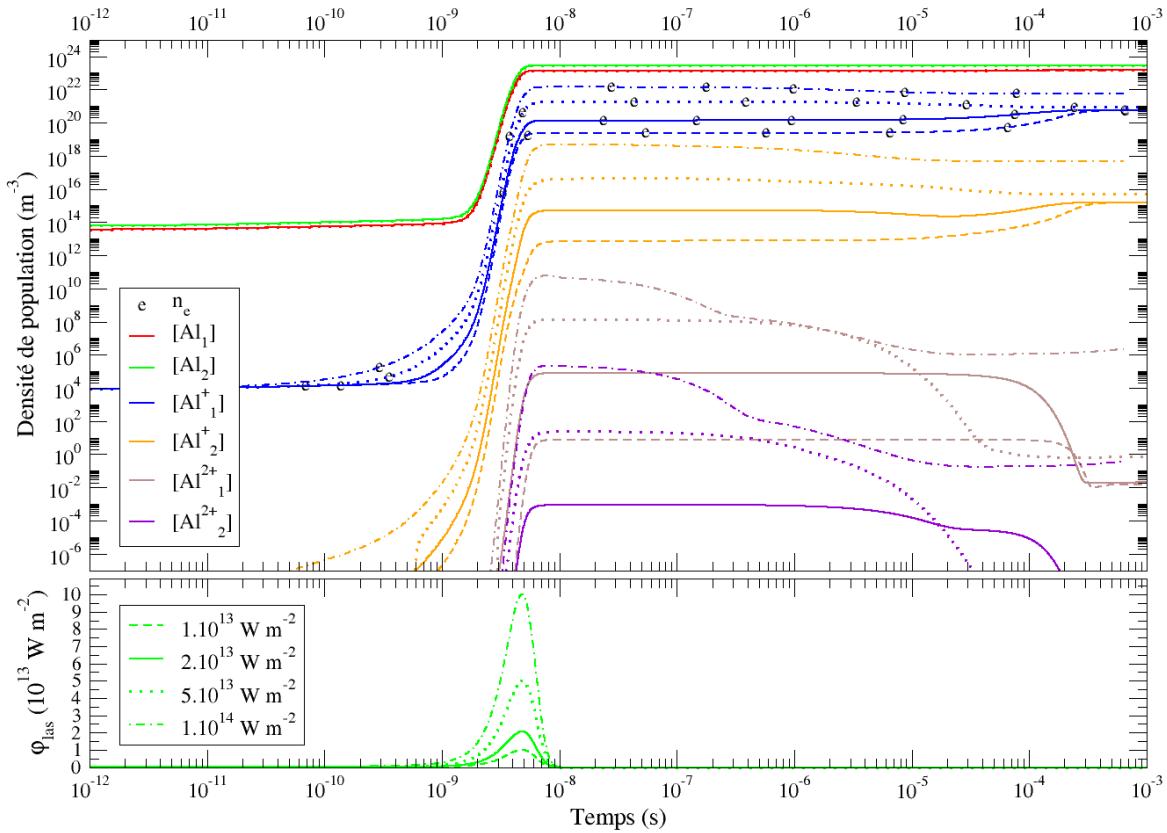


FIGURE 3.1.15 – En haut, évolution temporelle des densités de population pour quatre densités de flux laser différentes. En bas, évolutions temporelles des densités de flux laser  $\varphi_{las}$ . Par souci de clarté, les styles de traits sont respectés entre les deux graphiques.

plus, l'équilibre d'excitation est obtenu plus tôt (à  $t \approx 10^{-6}$  s) pour les configurations de cœur  $3s^2$  et  $3s3p$  de Al et nous pouvons supposer que cet équilibre est également atteint plus tôt pour les autres configurations de cœur dans ces conditions de densité de flux laser car elles sont très proches de  $T_e = T_A$  (moins de 10% d'écart) et tendent à s'approcher de plus en plus. Ceci est dû à la densité électronique plus élevée obtenue à forte densité de flux laser et au meilleur couplage collisionnel qui en résulte.

Finalement, nous pouvons conclure que la modification de la densité de flux maximale influe sur :

- la densité électronique et les densités des états ioniques mais n'a pas de conséquence notable sur l'évolution de la densité de l'état fondamental de l'atome,
- l'évolution de la température électronique et de manière moins prononcée sur l'évolution de la température des lourds,
- l'importance des processus radiatifs, notamment l'ionisation multiphotonique,
- les processus de pertes radiatives tels que l'émission spontanée et le Bremsstrahlung thermique de manière indirecte (cette influence étant plus étroitement liée aux densités des particules chargées)
- les températures d'excitation de sorte que l'équilibre d'excitation est atteint plus rapidement lorsque la densité de flux laser est élevée. On peut également conclure que cet effet est dû à l'augmentation de la densité électronique, ce qui a pour effet d'accroître la fréquence de collision et de conduire à l'équilibre d'excitation.

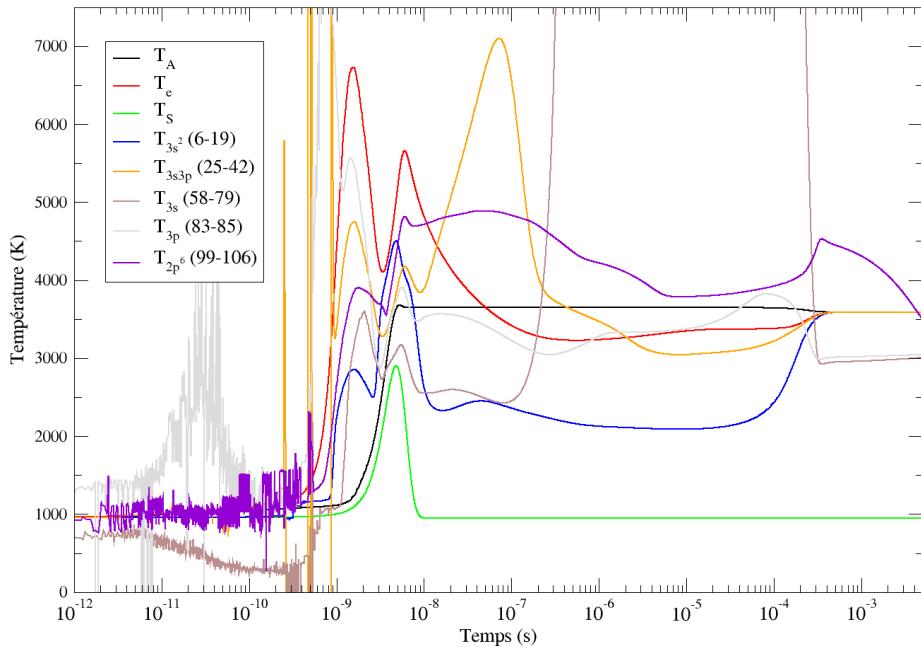


FIGURE 3.1.16 – Évolution temporelle des températures d'excitation dans les conditions :  $\varphi_{las}^{max} = 10^{13} \text{ W m}^{-2}$  et  $T_S^{max} = 2900 \text{ K}$ .

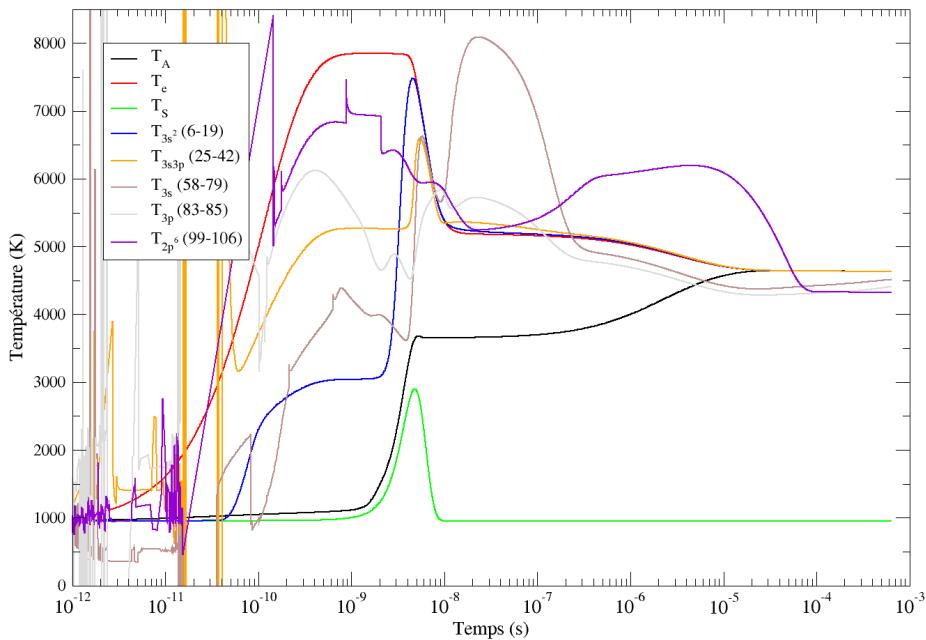


FIGURE 3.1.17 – Évolution temporelle des températures d'excitation dans les conditions :  $\varphi_{las}^{max} = 10^{14} \text{ W m}^{-2}$  et  $T_S^{max} = 2900 \text{ K}$ .

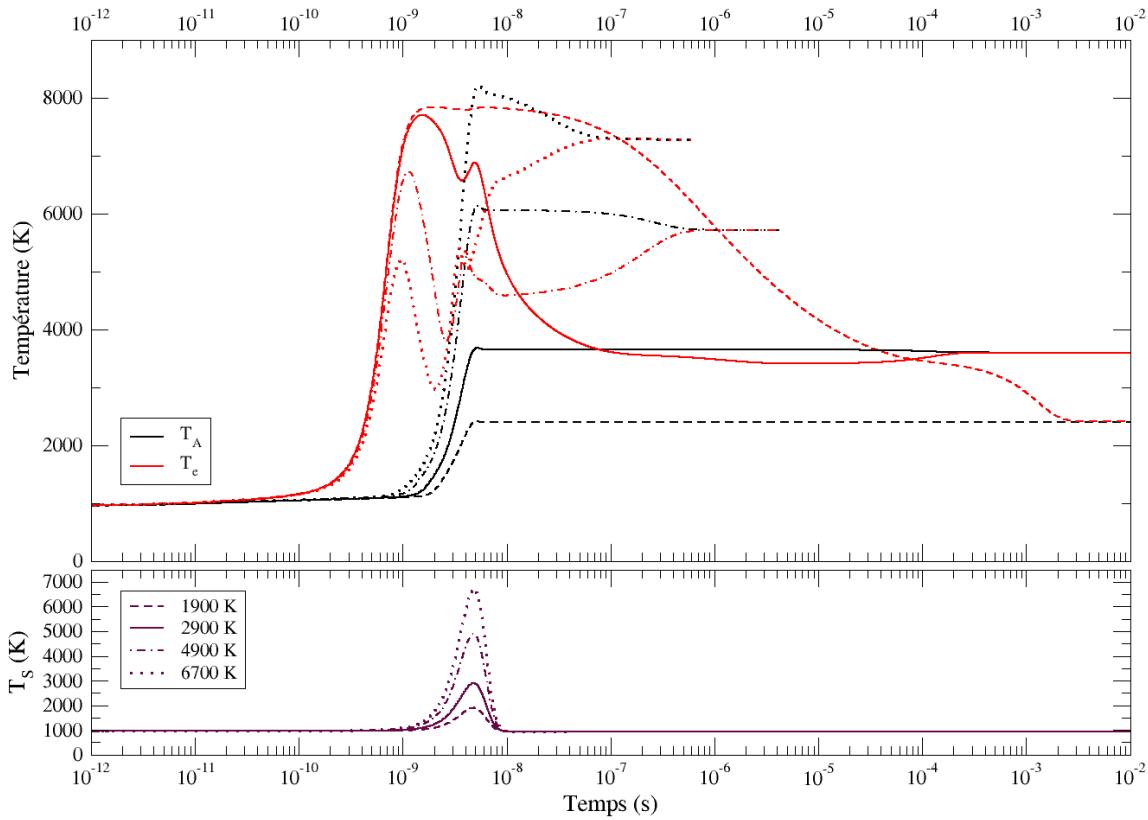


FIGURE 3.1.18 – En haut, évolution temporelle des températures du plasma :  $T_e$  courbe rouge et  $T_A$  courbe noire pour quatre évolutions de la température de surface différentes. En bas, évolutions temporelles des températures de surface  $T_S$ . Par souci de clarté, les styles de traits sont respectés entre les deux graphiques.

### 3.1.2.b Rôle de la température de surface

Nous savons d'ores et déjà que la température de surface est le paramètre essentiel pilotant l'augmentation de la densité totale via le processus d'évaporation. Afin d'illustrer l'influence d'un changement de la température de surface maximale  $T_S^{max}$ , nous considérons dans la suite quatre valeurs de cette température :

- $T_S^{max} = 1900$  K qui correspond à un faible échauffement de la surface,
- $T_S^{max} = 2900$  K c'est-à-dire la température intervenant dans le cas-test,
- $T_S^{max} = 4900$  K et
- $T_S^{max} = 6700$  K qui correspond à l'atteinte de la température critique.

Au delà de cette dernière valeur, l'évaporation est dite super-critique et ne peut être traitée dans le cadre des hypothèses de notre modèle.

La figure 3.1.18 illustre l'évolution des températures du plasma lorsque le calcul est effectué pour ces quatre conditions de  $T_S^{max}$  et dans les conditions du cas-test. Les évolutions de  $T_e$  et  $T_A$  avant  $5.10^{-10}$  s ne dépendent pas des différentes évolutions de la température de surface. Puis, hormis pour le cas où  $T_S^{max} = 1900$  K, nous remarquons que le pic de température entre  $10^{-9}$  s et  $2.10^{-9}$  s est plus important lorsque le calcul est effectué dans les conditions où  $T_S^{max}$  est moins élevée. À l'inverse, la température des lourds augmente plus fortement à mesure que  $T_S^{max}$  est plus élevée. De même, l'augmentation de  $T_A$  et l'inversion de température a lieu de plus en plus tôt lorsque  $T_S^{max}$  est élevée excepté pour le cas où  $T_S^{max} = 1900$  K pour lequel il n'y a pas d'inversion de température. Enfin, au

cours de la recombinaison, on s'aperçoit que la température de thermalisation est plus élevée et que cette thermalisation a lieu d'autant plus tôt que  $T_S^{max}$  est élevée.

Pour les deux cas  $T_S^{max} = 1900$  K et  $T_S^{max} = 6700$  K, on étudie l'influence de chaque processus sur les évolutions des températures à partir des figures 3.1.19 et 3.1.20. Ainsi, on remarque que l'influence de l'ionisation multiphotonique dans le cas où  $T_S^{max} = 1900$  K pour les temps inférieurs à  $10^{-8}$  s est semblable à celle du cas-test. L'influence de l'évaporation sur  $T_e$  est légèrement modifiée : elle vaut environ  $10^{11}$  K s $^{-1}$  à  $t = 4.10^{-9}$  s lorsque  $T_S^{max} = 1900$  K contre  $10^{13}$  K s $^{-1}$  pour le cas-test au même instant. L'influence du Bremsstrahlung inverse est elle aussi légèrement réduite dans le cas où  $T_S^{max} = 1900$  K. En phase de recombinaison, les comportements sont quelque peu différents. En effet, le phénomène d'évaporation ainsi que celui relatif au stockage d'énergie d'excitation et d'ionisation influencent l'évolution de  $T_A$  plus longtemps (jusqu'à  $t \approx 2.10^{-5}$  s). De plus, nous observons que la désexcitation par impact électronique devient prédominante sur l'excitation par impact électronique autour de  $t \approx 5.10^{-5}$  s et le reste jusqu'à la fin du calcul. Enfin, nous mettons en évidence que le Bremsstrahlung thermique est négligeable dans ces conditions puisqu'il n'excède pas  $10^{1.5}$  K s $^{-1}$  alors que son influence atteignait quelques  $10^{4.5}$  K s $^{-1}$ .

Concernant la figure 3.1.20, nous étudions l'influence des processus durant l'interaction laser/plasma bien que le calcul soit toujours en cours. Les évolutions temporelles de  $\Theta_A$  et  $\Theta_e$  entre  $10^{-9}$  s et  $1.5.10^{-8}$  s sont très intéressantes puisque les processus inverses de l'ionisation multiphotonique et l'excitation par impact électronique sont prédominants par rapport à leurs processus directs respectifs entre  $4.10^{-9}$  s et  $5.10^{-9}$  s. De plus, nous pouvons souligner la forte influence des processus radiatifs. En effet, le Bremsstrahlung inverse atteint quelques  $10^{14}$  K s $^{-1}$  à  $t = 6.10^{-9}$  s alors que sa valeur maximale dans les conditions du cas-test était de  $10^{11}$  K s $^{-1}$ . De ce fait, le Bremsstrahlung inverse est le processus prédominant contribuant à l'augmentation de la température électronique entre  $4.10^{-9}$  s et  $8.10^{-9}$  s. De même, l'émission spontanée et le Bremsstrahlung thermique conduisent à réduire respectivement  $T_A$  et  $T_e$  de quelques  $10^9$  K s $^{-1}$  à  $t = 4.10^{-8}$  s, ce qui implique des processus cinquante fois plus forts que dans les conditions du cas-test.

Après avoir étudié l'influence d'une modification de la température de surface sur les températures du plasma, nous étudions son influence sur l'évolution des densités de population à partir de la figure 3.1.21. Nous constatons sur cette figure que la densité totale du plasma est plus importante lorsque le calcul est effectué dans des conditions où  $T_S^{max}$  est élevé. De plus, nous pouvons voir que le degré d'ionisation est plus élevé dans le cas où  $T_S^{max} = 6700$  K (environ  $10^{-2}$ ) que pour celui où  $T_S^{max} = 1900$  K (quelques  $10^{-4}$ ). De même, le rapport entre les densités des ions  $\text{Al}^+$  et  $\text{Al}^{2+}$  est réduit lorsque le calcul est effectué avec de fortes températures de surface : ce rapport vaut  $10^{10}$  quand  $T_S^{max} = 6700$  K et  $10^{16}$  quand  $T_S^{max} = 1900$  K. Il est intéressant de noter que les densités de population n'évoluent pas dans la phase de recombinaison pour le cas où  $T_S^{max} = 1900$  K contrairement à celles du cas-test qui évoluent nettement autour de  $10^{-4}$  s.

Les figures 3.1.22 et 3.1.23 représentent les évolutions des différentes températures d'excitation dans les deux cas extrêmes considérés pour  $T_S^{max}$ . On observe que l'équilibre d'excitation n'est jamais atteint lorsque le calcul est effectué avec  $T_S^{max} = 1900$  K. Seule  $T_{3s^2}$  est proche de l'équilibre à  $t = 10^{-2}$  s. Les autres évolutions de température sont très désordonnées et ne tendent pas vers la température de thermalisation de 2400 K. De plus, les températures d'excitation  $T_{3s3p}$  et  $T_{3s}$  n'ont que peu de signification physique aux temps longs. Dans ces conditions, l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique local n'est clairement pas valable.

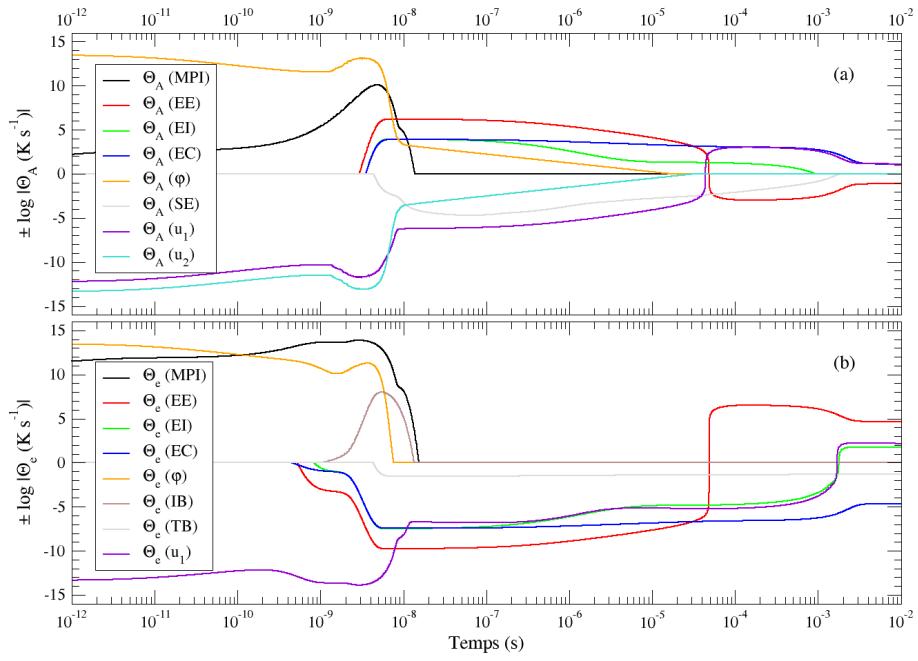


FIGURE 3.1.19 – Évolution temporelle de l'influence des types de processus élémentaires sur la température des lourds (a) et des électrons (b) dans les conditions  $\varphi_{las}^{max} = 2.10^{13} \text{ W m}^{-2}$  et  $T_S^{max} = 1900 \text{ K}$ .

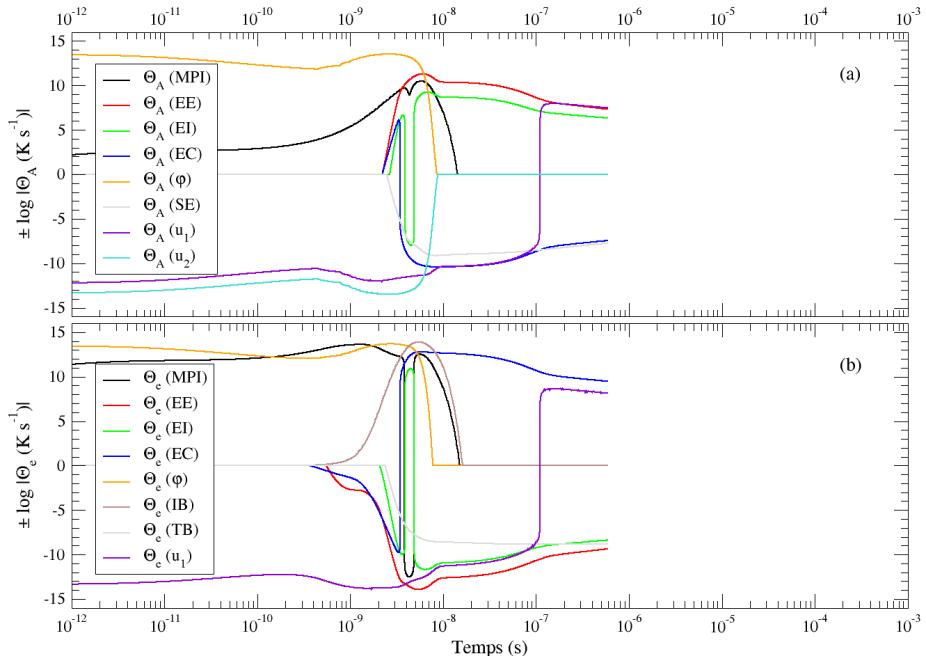


FIGURE 3.1.20 – Évolution temporelle de l'influence des types de processus élémentaires sur la température des lourds (a) et des électrons (b) dans les conditions  $\varphi_{las}^{max} = 2.10^{13} \text{ W m}^{-2}$  et  $T_S^{max} = 6700 \text{ K}$ .

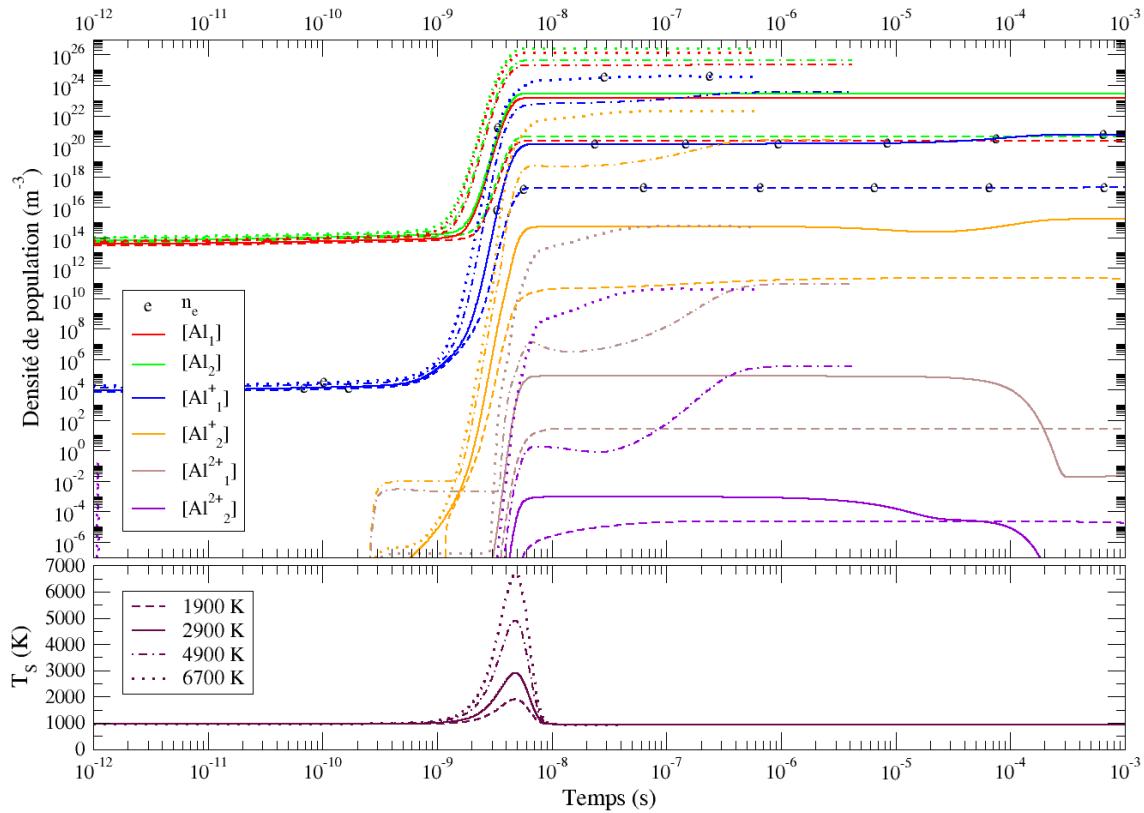


FIGURE 3.1.21 – En haut, évolution temporelle des densités de population pour quatre valeurs de la température de surface. En bas, évolutions temporelles des températures de surface  $T_S$ . Par souci de clarté, les styles de traits sont respectés entre les deux graphiques.

A l'inverse, lorsque le calcul est mené avec  $T_S^{max} = 6700$  K, l'équilibre d'excitation est atteint dès  $t = 8 \cdot 10^{-9}$  s. En effet, nous avons une très bonne corrélation entre les différentes températures d'excitation des différentes espèces avec la température du partenaire de collision privilégié, c'est-à-dire les électrons. On voit bien l'importance d'une forte densité électronique et par conséquent d'une forte fréquence de collision pour atteindre l'équilibre d'excitation rapidement.

Cette brève étude de l'influence de la température de surface sur le comportement du plasma nous permet d'en tirer les conclusions suivantes :

- une forte température de surface induit une évaporation depuis la surface plus importante.
- les niveaux de densités de population atteints sont bien plus importants lorsque la température de surface est élevée. Par conséquent, la thermalisation s'opère plus rapidement et s'effectue à plus haute température.
- les processus radiatifs jouent un rôle plus important du fait des fortes densités de population.
- l'équilibre thermodynamique local n'est clairement pas vérifié lorsque la température de surface n'est pas suffisante. C'est-à-dire lorsque les fréquences de collision sont faibles.

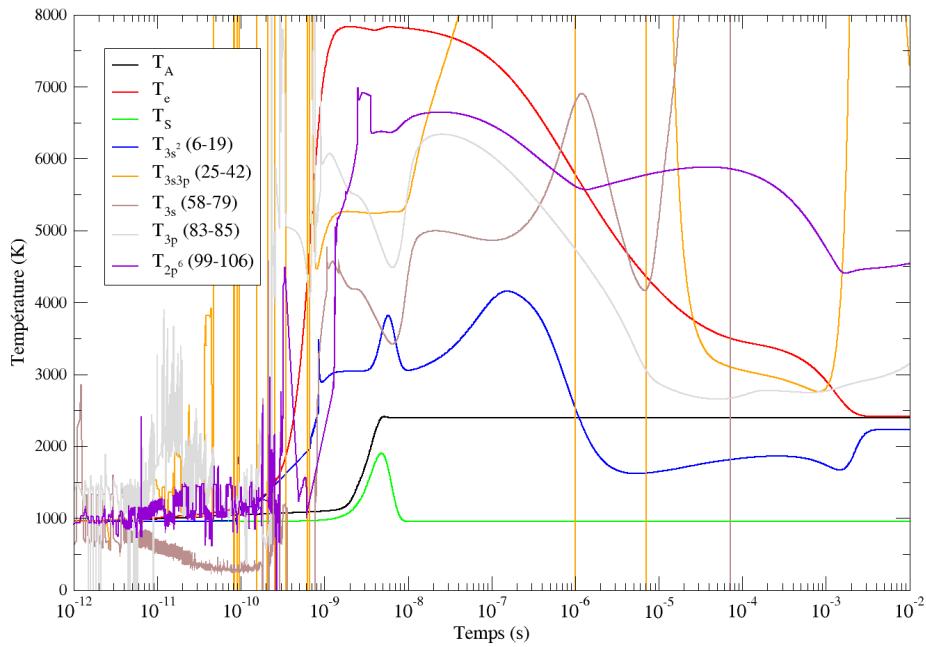


FIGURE 3.1.22 – Évolution temporelle des températures d'excitation dans les conditions :  $\varphi_{las}^{max} = 2.10^{13} \text{ W m}^{-2}$  et  $T_S^{max} = 1900 \text{ K}$ .

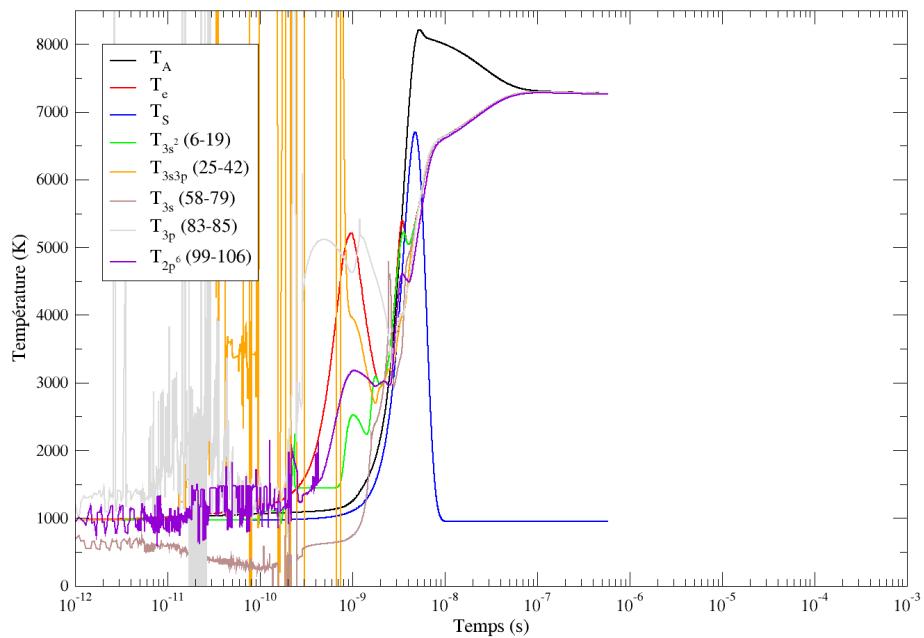


FIGURE 3.1.23 – Évolution temporelle des températures d'excitation dans les conditions :  $\varphi_{las}^{max} = 2.10^{13} \text{ W m}^{-2}$  et  $T_S^{max} = 6700 \text{ K}$ .

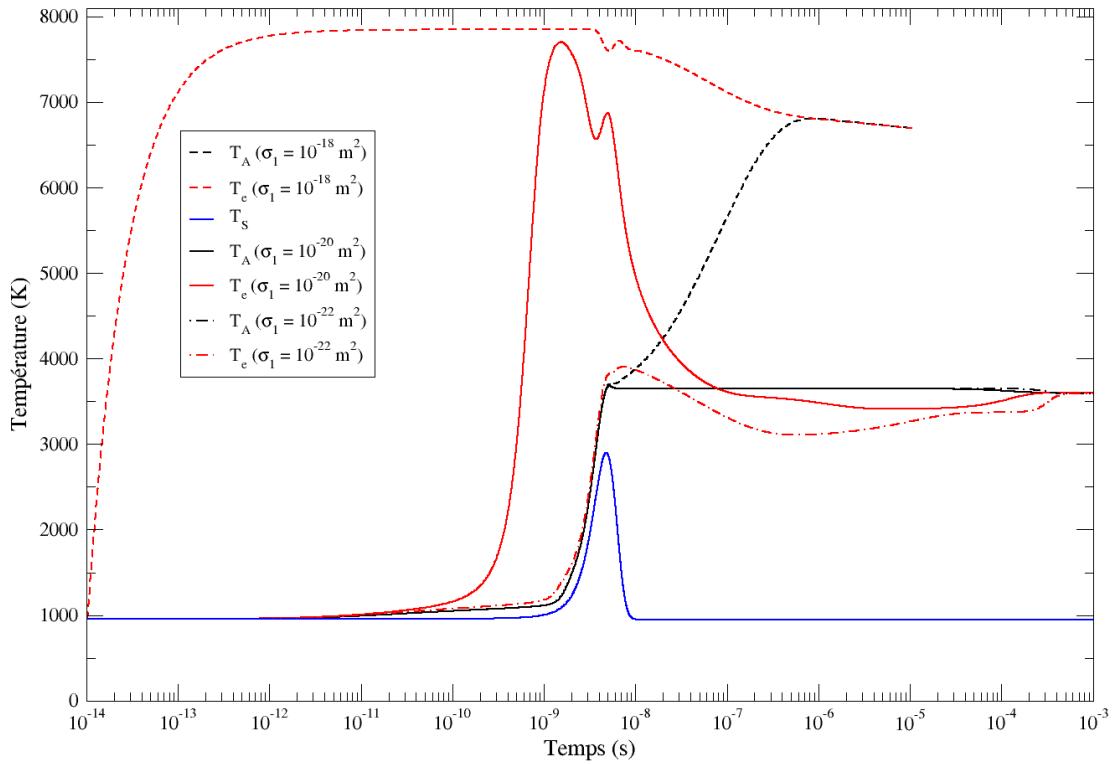


FIGURE 3.1.24 – Évolution temporelle des températures du plasma :  $T_e$  courbe rouge,  $T_A$  courbe noire et  $T_S$  courbe bleue pour trois valeurs de la section efficace de photoionisation :  $\sigma_1 = 10^{-18} \text{ m}^2$  en traits tiretés,  $\sigma_1 = 10^{-20} \text{ m}^2$  en traits pleins et  $\sigma_1 = 10^{-22} \text{ m}^2$  en traits tiret-pointillés.

### 3.1.3 Influence des données du modèle A

Dans cette section, nous allons étudier l'influence de certaines données du modèle. L'ionisation multiphotonique étant le processus majoritaire pilotant la création du plasma (comme nous l'avons montré dans la section précédente) nous allons étudier l'influence de la section efficace d'ionisation par un photon (notée  $\sigma_1$ ). Puis nous étudierons l'influence des processus radiatifs tels que l'émission spontanée et le Bremsstrahlung thermique ou encore l'influence des processus collisionnels tels que l'excitation et l'ionisation par impact électronique.

#### 3.1.3.a Rôle de la section efficace d'ionisation multiphotonique

La figure 3.1.24 présente les évolutions temporelles des températures du plasma lorsque le calcul est effectué pour trois valeurs de la section efficace de photoionisation :

- $\sigma_1 = 10^{-18} \text{ m}^2$ ,
- $\sigma_1 = 10^{-20} \text{ m}^2$  qui correspond à la section efficace proposée par Grey Morgan [87] et qui est utilisé dans notre cas-test et
- $\sigma_1 = 10^{-22} \text{ m}^2$  qui est la section efficace proposée par Gamal [77].

On constate que l'évolution de  $T_e$  est fortement dépendante de la section efficace d'ionisation multiphotonique. En effet, on constate que lorsque la section efficace est importante, l'augmentation de la température électronique est plus rapide. Dans le cas où  $\sigma_1 = 10^{-22} \text{ m}^2$ , les électrons ne sont pas échauffés par ionisation multiphotonique, si bien

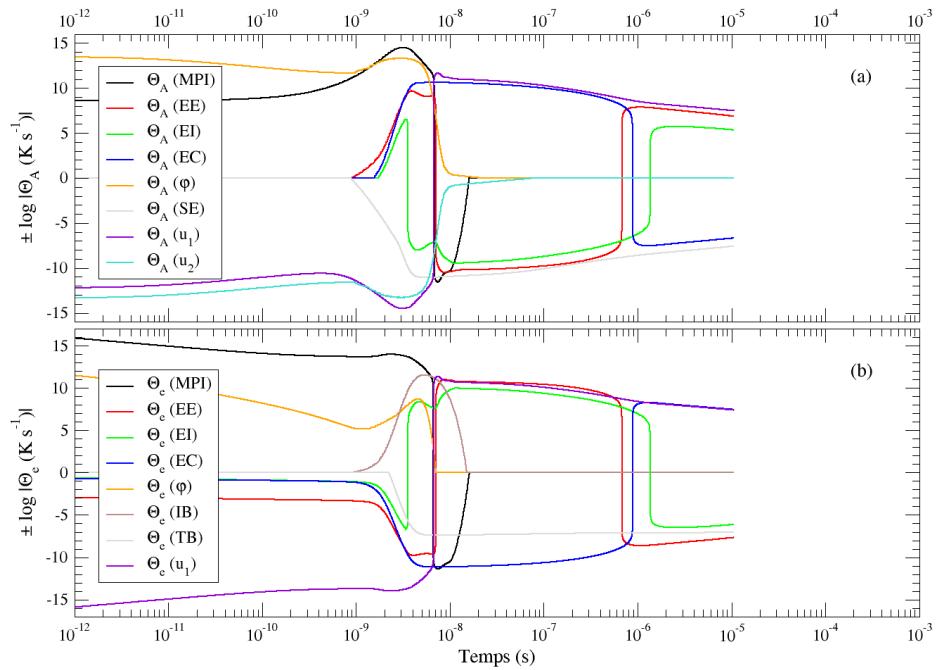


FIGURE 3.1.25 – Évolution temporelle de l'influence des types de processus élémentaires sur la température des lourds (a) et des électrons (b) lorsque  $\sigma_1 = 10^{-18} \text{ m}^2$ .

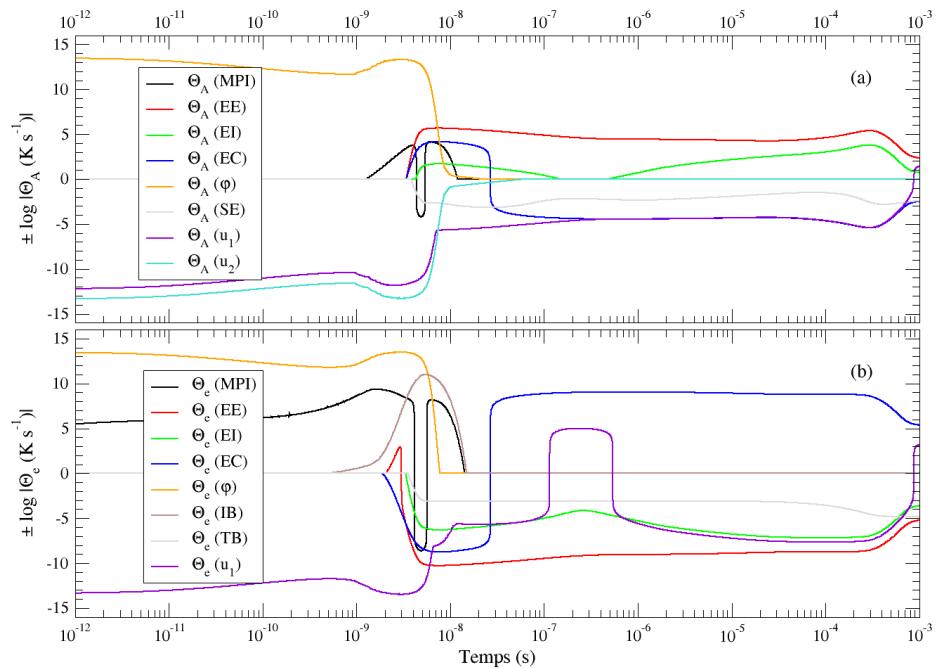


FIGURE 3.1.26 – Évolution temporelle de l'influence des types de processus élémentaires sur la température des lourds (a) et des électrons (b) lorsque  $\sigma_1 = 10^{-22} \text{ m}^2$ .

qu'à la fin de la phase de création, la température électronique n'excède pas 4000 K. Les électrons n'étant pas suffisamment chauds, les collisions élastiques ne permettent pas une thermalisation rapide et celle-ci s'opère à  $4.10^{-3}$  s c'est-à-dire plus tardivement que pour le cas-test. A l'inverse, lorsque la section efficace vaut  $\sigma_1 = 10^{-18} \text{ m}^2$ , les électrons sont suffisamment énergétiques pour induire une forte augmentation de la température des lourds entre  $5.10^{-9}$  s et  $5.10^{-7}$  s. Dans ces conditions, la thermalisation a lieu rapidement (à  $t = 10^{-6}$  s) à 6700 K.

Comme pour les autres calculs, nous discutons l'influence des paramètres au travers des figures 3.1.25 et 3.1.26. On remarque sur ces deux figures la grande différence concernant l'influence de la section efficace à un photon sur l'ensemble du processus d'ionisation multiphotonique.

La figure 3.1.25 montre l'aspect majoritaire de l'ionisation multiphotonique sur l'évolution des températures lorsque  $\sigma_1 = 10^{-18} \text{ m}^2$ . En effet, ce processus pilote l'augmentation de  $T_e$  sur la gamme  $[10^{-12}; 6.10^{-9}]$  s. Il est aussi bien plus fort concernant  $T_A$  puisqu'il vaut  $10^{8,7} \text{ K s}^{-1}$  à  $10^{-12}$  s alors qu'il n'atteignait que  $10^{2,2} \text{ K s}^{-1}$  dans les conditions du cas-test. Il est d'ailleurs intéressant de remarquer que l'influence de l'évaporation sur la température électronique est moindre que dans les conditions du cas-test ( $10^5 \text{ K s}^{-1}$  contre  $10^{12} \text{ K s}^{-1}$  respectivement à  $10^{-9}$  s). Notons également que, dans le cas d'un calcul effectué avec  $\sigma_1 = 10^{-18} \text{ m}^2$ , les collisions élastiques, l'excitation et l'ionisation par impact électronique ont une influence non nulle à  $10^{-12}$  s. Ces vitesses de chauffages restent cependant négligeables par rapport à celle induite par l'ionisation multiphotonique ou le stockage d'énergie de translation. Nous pouvons aussi remarquer que certains processus inverses deviennent prédominants. C'est le cas de la recombinaison à trois corps qui devient prédominante à  $4.10^{-9}$  s. A  $6.10^{-9}$  s ce sont les processus inverses de l'ionisation multiphotonique, l'excitation par impact électronique et le stockage d'énergie de translation qui l'emportent sur leurs processus directs respectifs. Enfin, on note que l'émission spontanée est plus importante dans ce cas ( $10^{11} \text{ K s}^{-1}$ ) que dans le cas-test ( $10^5 \text{ K s}^{-1}$ ) à  $10^{-8}$  s.

La figure 3.1.26 montre que l'ionisation multiphotonique ne joue aucun rôle sur l'évolution de  $T_A$  lorsque  $\sigma_1 = 10^{-22} \text{ m}^2$ . Par ailleurs, son influence sur  $T_e$  est bien moindre dans ces conditions que dans celles du cas-test ( $10^{5,5} \text{ K s}^{-1}$  contre  $10^{11,5} \text{ K s}^{-1}$  respectivement à  $10^{-12}$  s). On peut noter que l'excitation par impact électronique contribue positivement mais de manière très réduite au chauffage des électrons entre  $2.10^{-9}$  s et  $3.10^{-9}$  s avant de contribuer à la diminution de la température électronique. Nous remarquons également qu'entre  $4.10^{-9}$  s et  $5.10^{-9}$  s le processus inverse de l'ionisation multiphotonique devient prédominant et contribue à la diminution des deux températures. Enfin, notons la brève contribution du terme de stockage d'énergie de translation  $u_1$  au chauffage des électrons entre  $10^{-7}$  s et  $5.10^{-7}$  s. Ceci est dû à une faible variation de la densité électronique qui n'est malheureusement pas visible sur la figure 3.1.27.

Cette figure nous confirme que la densité électronique augmente plus rapidement lorsque la section efficace d'ionisation à un photon est forte. Ceci constitue une nouvelle preuve que l'ionisation multiphotonique est le processus qui crée les électrons aux temps courts. De même, la densité électronique maximale atteinte est d'autant plus forte que  $\sigma_1$  est élevée. En effet, à  $10^{-8}$  s, elle vaut  $10^{23} \text{ m}^{-3}$  pour  $\sigma_1 = 10^{-18} \text{ m}^2$  et seulement  $10^{19} \text{ m}^{-3}$  lorsque  $\sigma_1 = 10^{-22} \text{ m}^2$ . Ceci correspond respectivement à des degrés d'ionisation de 0,5 (une particule sur deux est une particule chargée) et de  $5.10^{-5}$ . Il est intéressant de noter qu'à long terme, les densités des espèces obtenues par les calculs effectués avec  $\sigma_1 = 10^{-20} \text{ m}^2$  et  $\sigma_1 = 10^{-22} \text{ m}^2$  tendent vers les mêmes valeurs et deviennent égales à

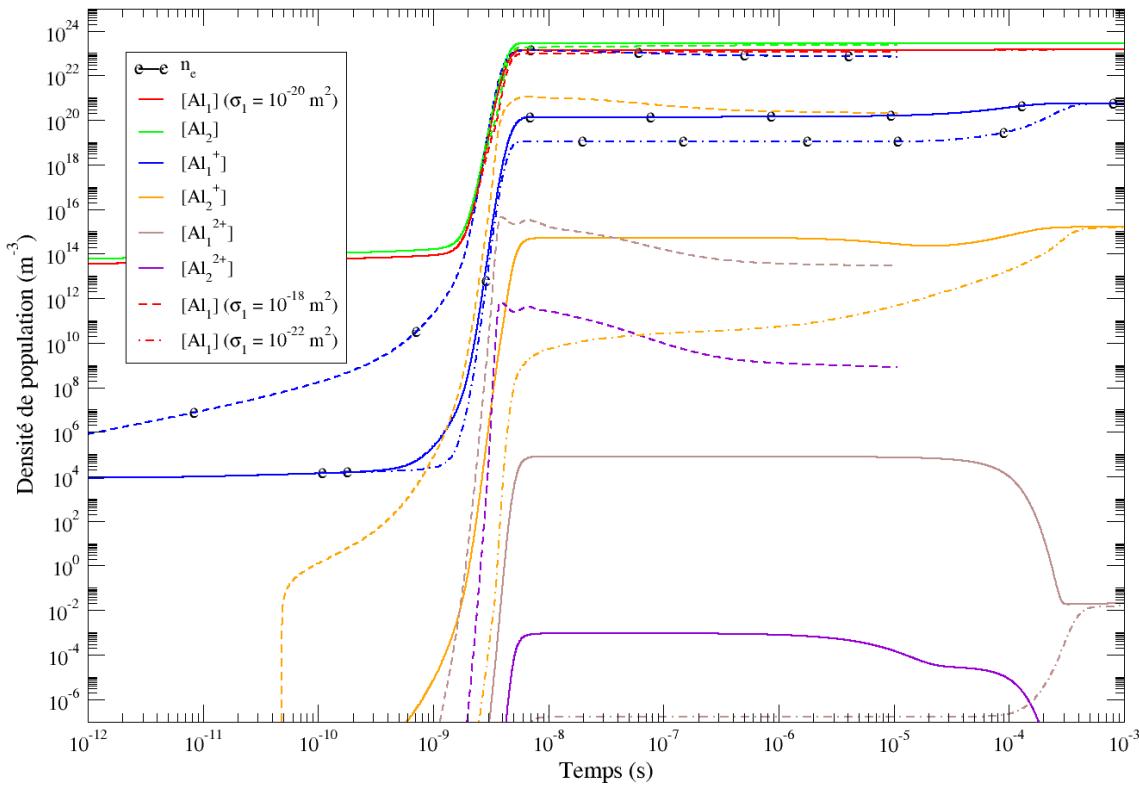


FIGURE 3.1.27 – Évolution temporelle des densités de population pour trois valeurs de la section efficace d'ionisation photonique :  $\sigma_1 = 10^{-18} \text{ m}^2$  en traits tiretés,  $\sigma_1 = 10^{-20} \text{ m}^2$  en traits pleins et  $\sigma_1 = 10^{-22} \text{ m}^2$  en traits tiret-pointillés. Par souci de clarté, nous avons développé l'intégralité de la légende uniquement pour  $[\text{Al}_1]$ .

partir de  $6.10^{-4} \text{ s}$ .

La figure 3.1.28 montre l'évolution des températures d'excitation avec  $\sigma_1 = 10^{-18} \text{ m}^2$  et on observe que les températures d'excitation ont très tôt une signification physique. De plus, nous pouvons remarquer que l'équilibre d'excitation semble être atteint dès  $4.10^{-9} \text{ s}$ . Cependant, les températures d'excitation s'écartent de la température électronique autour de  $10^{-8} \text{ s}$ . Enfin, l'équilibre d'excitation est définitivement atteint à  $10^{-5} \text{ s}$  excepté pour la configuration de cœur  $2p^6$  de  $\text{Al}^{2+}$  pour qui la température d'excitation est très légèrement différente de  $T_e$  ( $\sim 300 \text{ K}$  d'écart).

L'évolution des différentes températures d'excitation lorsque  $\sigma_1 = 10^{-22} \text{ m}^2$  est illustrée par la figure 3.1.29. Nous constatons que dans ces conditions de calcul les températures d'excitation n'ont pas de signification physique avant  $4.10^{-9} \text{ s}$ . Après cet instant, les évolutions sont relativement modérées puisque à  $t = 10^{-7} \text{ s}$  la température d'excitation maximale est de  $T_{3s3p} = 5100 \text{ K}$ . Notons aussi que dans ces conditions, les configurations de cœur relatives à la même espèce sont proches les unes des autres à partir de  $4.10^{-8} \text{ s}$ . A cet instant, l'équilibre d'excitation est vérifié pour les configurations de cœur de Al. Pour  $\text{Al}^+$  et  $\text{Al}^{2+}$ , les températures d'excitation diffèrent de  $T_e$  de 600 K et 300 K respectivement.

### 3.1.3.b Rôle des processus collisionnels et radiatifs

Dans cette dernière sous-section concernant le modèle A, nous étudions le comportement du plasma lorsque les processus de pertes radiatives (émission spontanée et Brem-

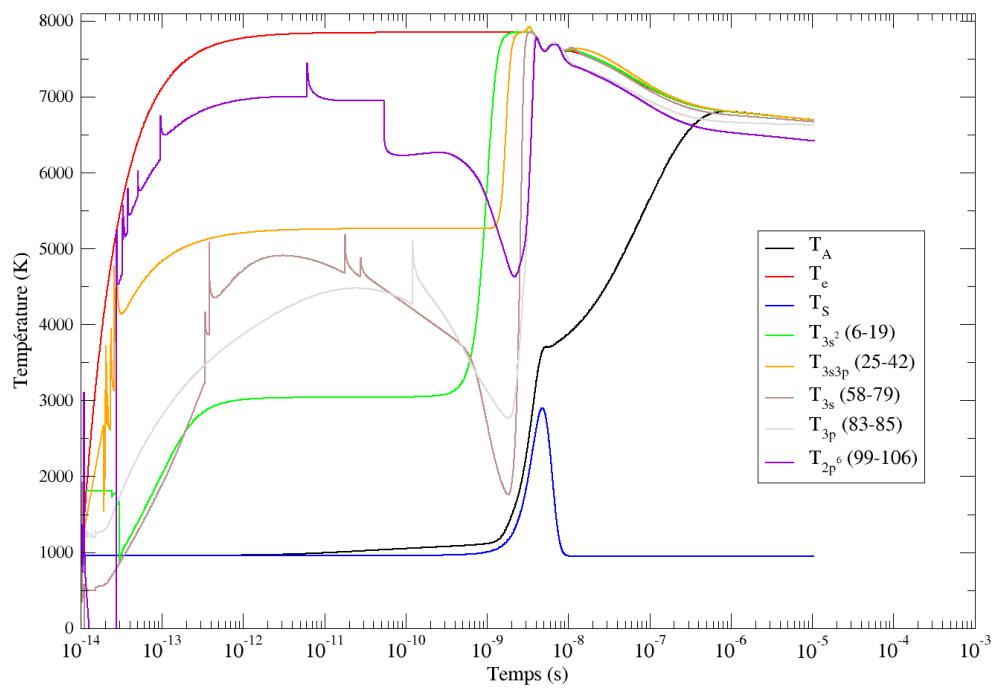


FIGURE 3.1.28 – Évolution temporelle des températures d'excitation lorsque  $\sigma_1 = 10^{-18} \text{ m}^2$ .

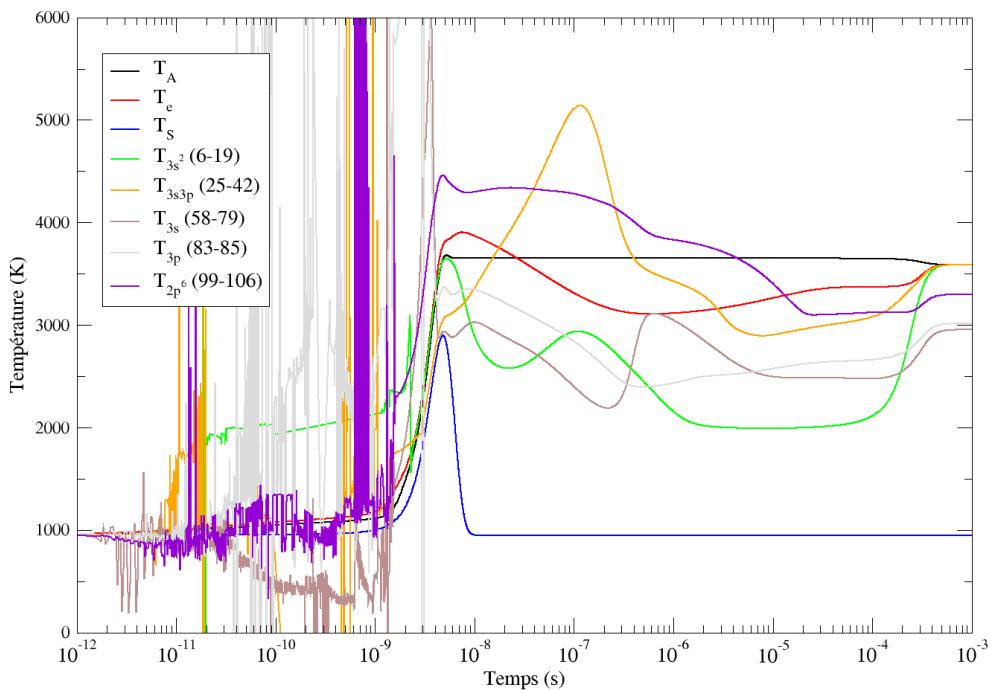


FIGURE 3.1.29 – Évolution temporelle des températures d'excitation lorsque  $\sigma_1 = 10^{-22} \text{ m}^2$ .

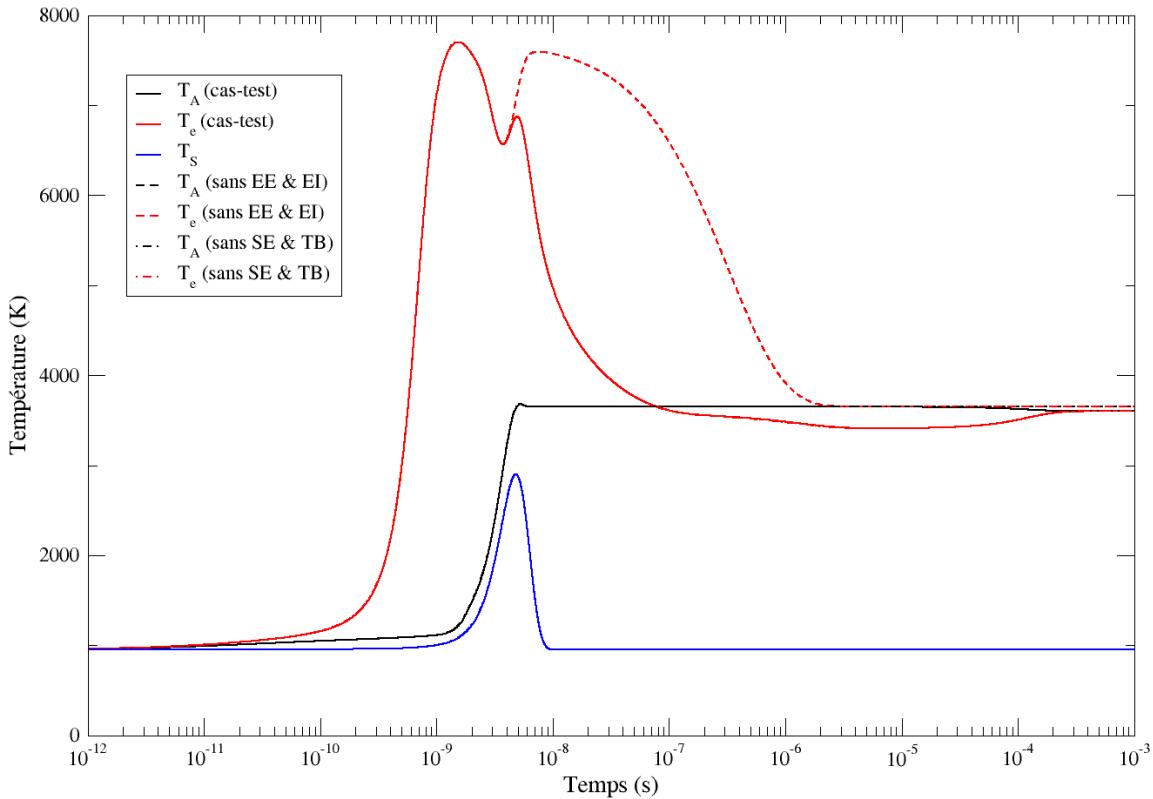


FIGURE 3.1.30 – Évolution temporelle des températures du plasma : Température des électrons  $T_e$  courbe rouge, Température des lourds  $T_A$  courbe noire et Température de surface  $T_S$  courbe bleue pour trois conditions : en traits pleins lorsque tous les processus sont pris en compte, en traits tiretés lorsque les processus collisionnels (EE et EI) sont négligés et en traits tiret-pointillés lorsque les processus radiatifs (SE et TB) sont négligés.

sstrahlung thermique) sont négligés d'une part et lorsque les processus collisionnels inélastiques électrons/lourds (excitation et ionisation par impact électronique) sont négligés d'autre part.

La figure 3.1.30 représente les évolutions temporelles des températures du plasma lorsque le calcul est effectué dans les trois conditions suivantes :

- tous les processus collisionnels et radiatifs sont pris en compte (cas-test).
- les processus collisionnels tels que l'excitation et l'ionisation par impact électronique sont supposés négligeables. Ceci correspond au cas où  $\alpha_i$ ,  $\alpha_e^P$  et  $\alpha_e^S$  des équations (2.1.78) de la page 68, (2.1.91) de la page 70 et (2.1.92) de la page 70 sont mis à zéro.
- les processus radiatifs tels que l'émission spontanée et le Bremsstrahlung thermique sont supposés négligeables. Ceci correspond d'une part à un facteur d'échappement  $\Lambda(k_0Z)$  nul et d'autre part à une section efficace  $\sigma_{tr}$  et un facteur de Gaunt  $G$  nuls<sup>8</sup>.

L'émission spontanée et le Bremsstrahlung thermique n'ont aucune influence notable sur les évolutions des températures du plasma pour ces conditions de densité de flux laser et de température de surface. Le calcul effectué en supposant l'excitation et l'ionisation par impact électronique négligeable est, quant à lui, plus intéressant. En effet, on remarque que  $T_e$  augmente de nouveau entre  $4.10^{-9}$  s et  $8.10^{-9}$  s où elle atteint 7600 K. A partir de cet instant, l'écart de température entre  $T_e$  et  $T_A$  diminue et devient négligeable dès

8. Ces courbes se confondent avec celles résultants du calcul effectué dans les conditions du cas-test.

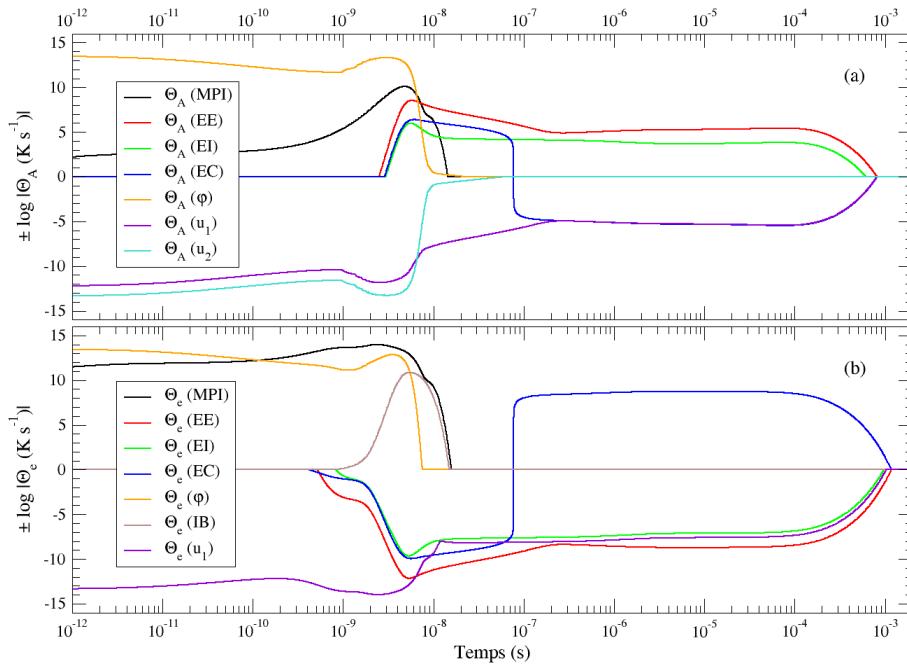


FIGURE 3.1.31 – Évolution temporelle de l'influence des types de processus élémentaires sur la température des lourds (a) et des électrons (b) lorsque les processus radiatifs (SE et TB) sont négligés.

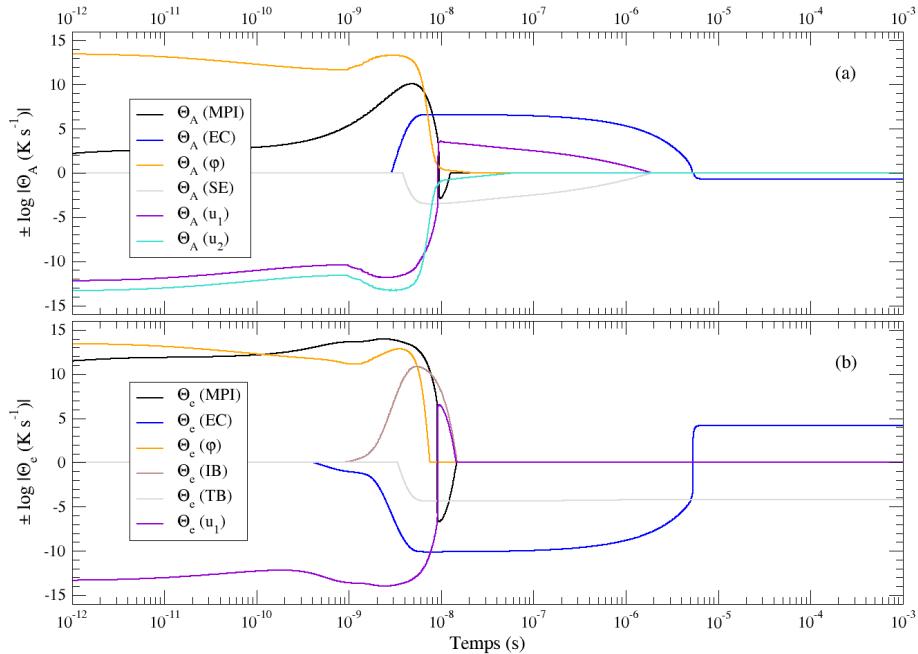


FIGURE 3.1.32 – Évolution temporelle de l'influence des types de processus élémentaires sur la température des lourds (a) et des électrons (b) lorsque les processus collisionnels (EE et EI) sont négligés.

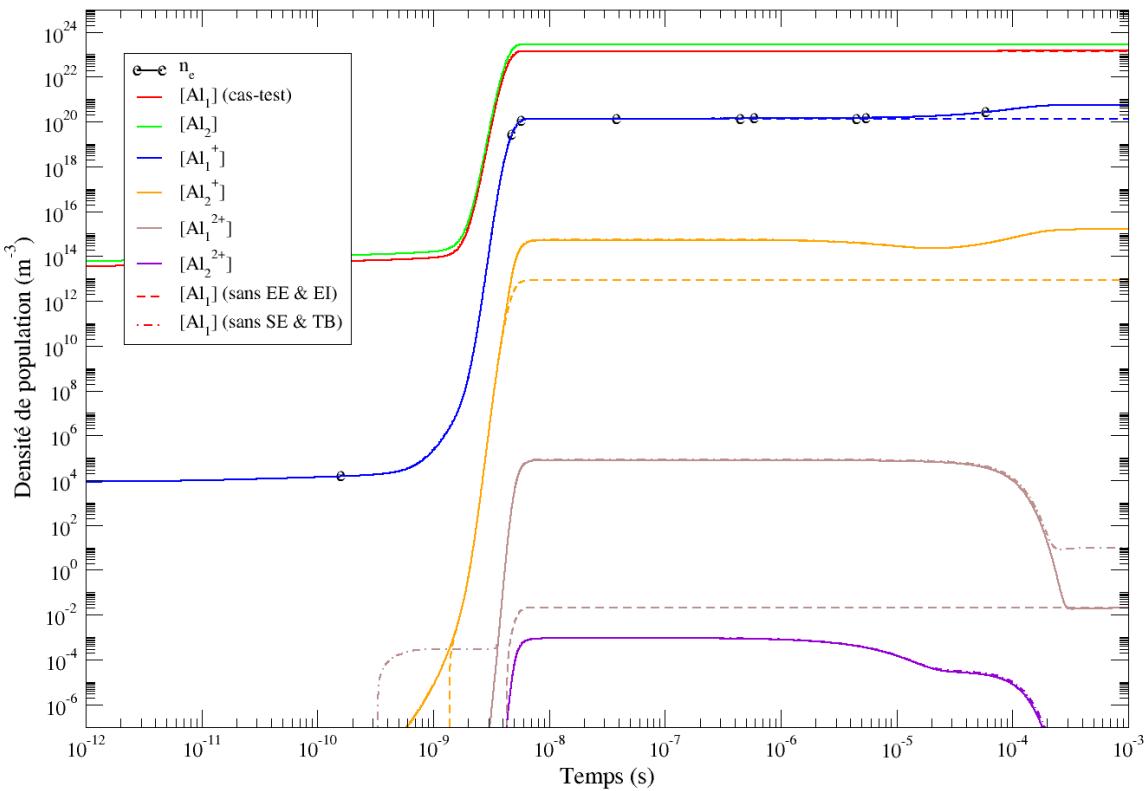


FIGURE 3.1.33 – Évolution temporelle des densités de population pour trois conditions : en traits pleins lorsque tous les processus sont pris en compte, en traits tiretés lorsque les processus collisionnels (EE et EI) sont négligés et en traits tiret-pointillés lorsque les processus radiatifs (SE et TB) sont négligés. Par souci de clarté, nous avons développé l'intégralité de la légende uniquement pour  $[Al_1]$ .

$2.10^{-6}$  s. Nous constatons que dans ce cas, il n'y a pas d'inversion de température et que la température des lourds est constante entre  $6.10^{-9}$  s et  $10^{-3}$  s ( $T_A = 3650$  K).

La figure 3.1.31 confirme notre analyse concernant l'influence de l'émission spontanée et du Bremsstrahlung thermique. Ces deux processus n'induisent aucune modification des influences de chaque processus (les courbes sont confondues avec celle du cas-test). C'est seulement à partir de  $4.10^{-4}$  s que ces deux processus (SE et TB) vont modifier le comportement du plasma comme le montre la comparaison de cette figure avec la figure 3.1.2 de la page 93. Il est cependant intéressant de noter que dans ce cas, tous les processus ont une influence nulle sur les évolutions des températures du plasma à partir de  $10^{-3}$  s. Dès lors, nous pouvons supposer que le plasma est proche de l'équilibre thermodynamique. L'étude des températures d'excitation permettra de confirmer cette hypothèse.

La figure 3.1.32 montre que l'influence des processus sur le comportement du plasma n'est pas modifié avant  $t = 6.10^{-9}$  s lorsque l'excitation et l'ionisation par impact électronique sont négligés. A partir de  $8.10^{-9}$  s, les collisions élastiques deviennent prédominantes et entraînent la thermalisation du plasma. Après  $1.5.10^{-8}$  s, l'émission spontanée et le terme de stockage d'énergie de translation des lourds s'opposent et tendent à devenir négligeables autour de  $2.10^{-6}$  s. Pour les électrons, le Bremsstrahlung thermique et les collisions élastiques sont les deux seuls processus à influencer l'évolution de la température.

La figure 3.1.33 montre l'évolution des densités de population dans les trois conditions de calcul. Les évolutions des densités des espèces majoritaires ( $Al_1$ ,  $Al_2$ ,  $Al_1^+$  et les

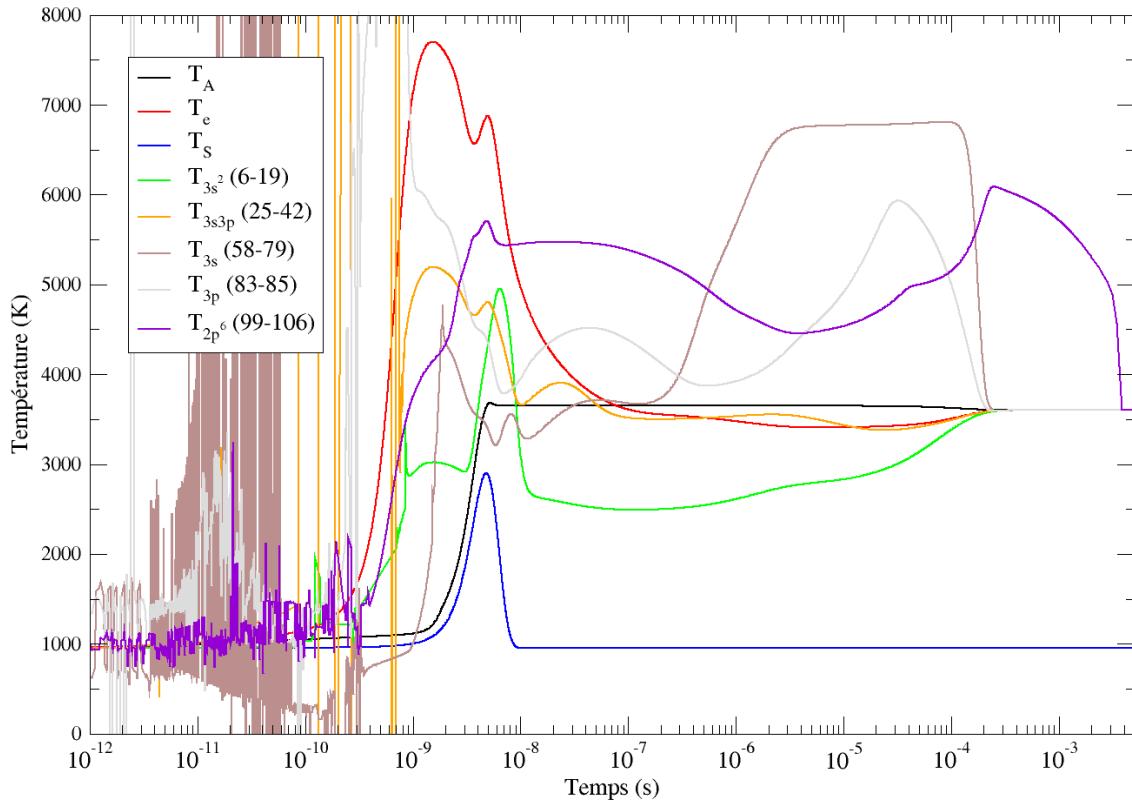


FIGURE 3.1.34 – Évolution temporelle des températures d'excitation lorsque les processus radiatifs (SE et TB) sont négligés.

électrons) ne sont pas modifiées jusqu'à  $t = 10^{-6}$  s. L'influence des processus radiatifs n'est visible que sur l'évolution de  $[Al_1^{2+}]$  avant  $4.10^{-9}$  s et après  $2.10^{-4}$  s. Pour les autres densités de population représentées, les évolutions sont identiques à celles du cas-test. Concernant l'influence des processus collisionnels, elle est visible à partir de  $1.5.10^{-9}$  s sur les évolutions de  $[Al_2^+]$  et des niveaux d'énergie supérieure puis à partir de  $10^{-6}$  s sur l'évolution de la densité du niveau fondamental de  $Al^+$ .

Concernant l'étude des températures d'excitation, nous ne présentons ici que les résultats relatifs au cas où les processus radiatifs sont négligés. En effet, les processus collisionnels jouant un rôle très important sur l'équilibre d'excitation, les points des graphiques de Boltzmann ne sont jamais répartis selon une droite. Les températures d'excitation dans ce cas n'ont pas de signification physique y compris à long terme.

La figure 3.1.34 montre l'évolution des températures d'excitation lorsque l'émission spontanée et le Bremsstrahlung thermique sont négligés. Nous observons que les évolutions sont modérées et que l'équilibre d'excitation est atteint à  $1.5.10^{-4}$  s pour la configuration de cœur  $3s3p$  puis à  $2.10^{-4}$  s pour les configurations de cœur  $3s^2$ ,  $3s$  et  $3p$ . Enfin, à partir de  $4.10^{-3}$  s, l'équilibre d'excitation est vérifié pour toutes les configurations de cœur.

En conclusion, l'étude des figures 3.1.31, 3.1.33 et 3.1.34 permet d'affirmer que le gaz est à l'équilibre thermodynamique pour des temps supérieurs à quelques  $10^{-3}$  s pour les raisons suivantes :

- l'équilibre d'excitation est vérifié pour chacune des configurations de cœur,
- la température d'excitation est la même d'une configuration de cœur à l'autre,
- cette température d'excitation est égale à la température cinétique du partenaire de collision privilégié,

- les densités n'évoluent plus dans le temps et
- la température de ce gaz est stationnaire.

\* \* \*

Cette section concernant l'influence des processus collisionnels et radiatifs clôt le chapitre présentant les résultats du modèle A qui ont fait l'objet de deux articles dans Spectrochimica Acta Part B et Journal of Physics : Conference series reportés respectivement en annexes [F](#) et [G](#).

A partir des différentes études menées, nous pouvons conclure sur plusieurs points :

- l'ionisation multiphotonique est le processus le plus important. Il pilote la phase de création et influence la phase de recombinaison. Il est donc crucial de choisir convenablement la section efficace relative à ce processus, la sensibilité à la valeur de  $\sigma_1$  des résultats mis en évidence étant importante,
- l'équilibre d'excitation est essentiellement dû aux processus collisionnels tels que l'excitation et l'ionisation par impact électronique. Le jeu de section efficace sélectionné pour décrire ces processus a une importance non négligeable sur les densités des états excités de  $\text{Al}^+$ . Il est donc nécessaire de choisir convenablement les sections efficaces de ces processus afin d'obtenir des niveaux de densités en ions susceptibles d'être cohérentes avec l'expérience,
- les équilibres d'excitation déduits de l'étude des températures d'excitation sont atteints d'autant plus tôt que la fréquence de collision est élevée, c'est-à-dire lorsque la densité électronique est grande,
- le temps d'atteinte de l'équilibre thermodynamique local dépend fortement des paramètres d'entrée du modèle. L'hypothèse de l'équilibre thermodynamique local n'est donc pas systématiquement vérifiée,
- contrairement à ce qu'affirment plusieurs auteurs, le Bremsstrahlung inverse reste minoritaire dans les cas de figures étudiés,
- les processus de pertes radiatives ont une influence très réduite sur la dynamique du plasma,
- la température de thermalisation est d'autant plus élevée et atteinte d'autant plus rapidement que la densité électronique est forte,
- l'équilibre d'excitation pour tous les niveaux jusqu'au fondamental est atteint d'autant plus rapidement que la densité électronique est forte.

Compte tenu de ces conclusions, il est évident qu'un calcul considérant un modèle où le couplage laser/surface est réalisé est essentiel pour la compréhension physique du phénomène dans son ensemble. C'est le cas du modèle B développé dans le chapitre suivant.



## Chapitre 3.2

# Résultats modèle couplé B

### 3.2.1 Couplage cible/plasma

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 2.1.6, le solveur permet de résoudre le système d'équations différentielles au cours du temps à l'aide d'un pas de temps calculé intrinsèquement. Le modèle B se compose comme suit :

- un ensemble d'équations dédié au calcul de l'enthalpie de chaque maille de la cible,
- un ensemble d'équations dédié au calcul des températures, de l'épaisseur et des densités du plasma.

En l'état actuel, il nous est possible :

- soit de déterminer les profils de température à chaque instant à l'intérieur de la cible lorsqu'elle est soumise à une densité de flux imposée à une de ses extrémités. De ce fait, il est possible de déduire la température de surface résultant de l'absorption et la diffusion de l'énergie thermique à l'intérieur de la cible,
- soit de calculer les paramètres du plasma soumis à une densité de flux laser et alimentée en espèces par une surface liquide de température variable.

Malheureusement, le couplage entre ces deux systèmes d'équations ne permet pas de converger vers une solution. En effet, lorsque nous regroupons les deux systèmes d'équation en un seul de telle sorte que le phénomène soit modélisé dans son intégralité, le calcul est infiniment long à converger. Plus précisément, le pas de temps calculé par le solveur est de l'ordre de  $10^{-30}$  s ce qui est supérieur à la précision numérique de la machine de calcul. De ce fait, les variables ne sont pas modifiées d'un pas de temps à l'autre et ne permettent donc pas de caractériser l'évolution temporelle des profils spatiaux de température à l'intérieur de la surface et des paramètres du plasma.

Dans ces conditions, seul un couplage fictif peut permettre la modélisation du phénomène. Nous avons donc calculé séparément les interactions laser/surface et laser/plasma. Ainsi, nous avons pu obtenir l'évolution temporelle de la température de surface de la cible que nous avons implémentée dans le modèle A.

### 3.2.2 Interaction laser/surface

Nous avons résolu l'équation de bilan de l'enthalpie volumique à l'intérieur de la cible d'aluminium en considérant le chauffage de la cible en surface par interaction avec une impulsion laser de densité de flux maximale  $\varphi_{las}^{max} = 2.10^{13} \text{ W m}^{-2}$ . Ceci revient à modéliser le phénomène en négligeant la vaporisation quelle que soit la température. Cette hypothèse simplificatrice permet d'en déduire les profils de température à l'intérieur de la cible.

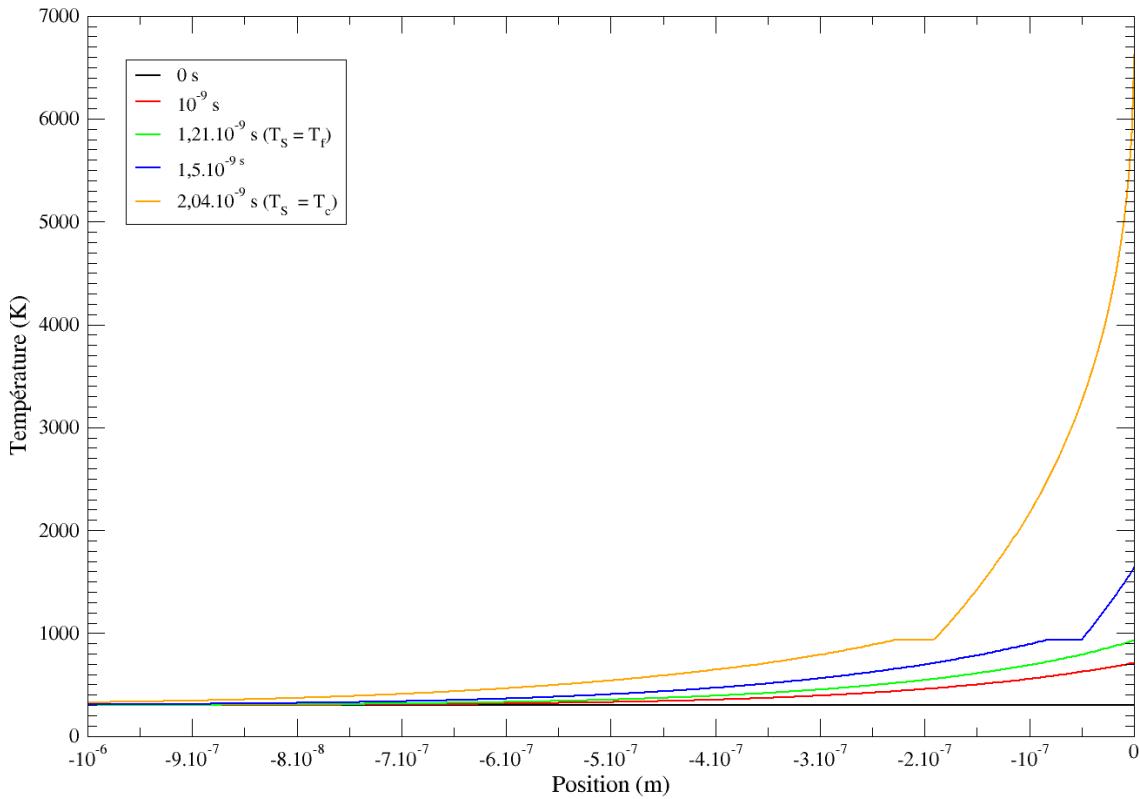


FIGURE 3.2.1 – Profils de température à l’intérieur de la cible lorsque  $\varphi_{las}^{max} = 2.10^{13} \text{ W m}^{-2}$ .

La figure 3.2.1 permet de constater l’influence de l’interaction laser/surface sur la température en chaque point de la cible. La cible étant initialement à 298 K, nous remarquons qu’après  $10^{-9}$  s, la surface de la cible a atteint plus de 700 K et la température de fusion est atteinte au bout de  $1,21.10^{-9}$  s en surface. Pour des temps plus grands, le palier de changement de phase est visible à 933,5 K. Ces résultats sont importants pour la modélisation de l’évaporation dans le cas du modèle B car ils permettent d’initialiser la densité des espèces du plasma naissant sur les différents niveaux d’énergie compte tenu de l’équilibre de Boltzmann à température de surface constante  $T_S = T_f$ . Dès lors, la résolution de l’équation de bilan de l’enthalpie volumique plutôt que l’équation de Fourier prend tout son sens. Ce palier de changement de phase est plus épais aux temps longs. En effet, cette épaisseur vaut  $3,3.10^{-8}$  m à  $1,5.10^{-9}$  s et  $4,8.10^{-8}$  m à  $2.10^{-9}$  s. A cet instant, le bain liquide mesure quelques  $7,5.10^{-7}$  m. Enfin, nous mettons en évidence l’atteinte de la température critique en surface de la cible après seulement  $2,04.10^{-9}$  s, c’est-à-dire lorsque la densité de flux laser vaut  $\varphi_{las} = 3,1.10^{12} \text{ W m}^{-2}$  ce qui correspond à seulement 15% de la densité de flux laser maximale. Dans ces conditions, l’absorptivité de la cible d’aluminium doit être considérée.

Nous avons calculé, dans différentes conditions d’absorptivité, la densité de flux laser nécessaire pour que la température maximale atteinte par la surface de la cible soit proche des conditions du cas-test, c’est-à-dire  $T_S^{max} = 2900 \text{ K}$  ou qu’elle soit proche de la température critique  $T_c = 6700 \text{ K}$ .

La table 3.2.1 illustre les résultats des différents calculs. Nous pouvons en conclure que l’absorptivité de l’aluminium doit être inférieure à 0,1 pour que les conditions du cas-test soient vérifiées.

$\alpha$	0,1	0,25	0,5	0,75	1
$T_S^{max}$					
2900 K	$9,0 \cdot 10^{12}$	$3,6 \cdot 10^{12}$	$1,8 \cdot 10^{12}$	$1,2 \cdot 10^{12}$	$9,3 \cdot 10^{11}$
6700 K	$1,5 \cdot 10^{13}$	$6,3 \cdot 10^{12}$	$3,2 \cdot 10^{12}$	$2,1 \cdot 10^{12}$	$1,6 \cdot 10^{12}$

TABLE 3.2.1 – Estimations de la densité de flux laser (en  $\text{W m}^{-2}$ ) nécessaire pour atteindre  $T_S^{max}$  selon la valeur de l'absorptivité de l'aluminium à 532 nm.

$\lambda$ (nm)	$T$ (K)	$\alpha_\lambda$	Référence	Année
350	$> 300$	$0,075 + 4,53 \cdot 10^{-5} T + 0,04 \theta (T - T_f)$	[7]	1999
500	300	0,097	[208]	1953
500	300	0,084	[95]	1955
500	300	0,083	[62]	1963
530	[300 ; 1800]	$0,039 + 3,63 \cdot 10^{-5} T + 0,068 \theta (T - T_f)$	[109]	1994
532	300	0,080	[18]	1997
532	1550	0,095	[134]	1993
532	300	0,072	[192]	1998

TABLE 3.2.2 – Estimations issues de la littérature de l'absorptivité de l'aluminium.  $\theta$  figure la distribution de Heaviside et  $T_f$  la température de fusion.

La table 3.2.2 liste quelques estimations issues de la littérature concernant l'absorptivité de l'aluminium pour différentes longueurs d'onde et différentes températures. Nous constatons que l'absorptivité dépend peu de la longueur d'onde entre 350 nm et 532 nm. En effet, le calcul de l'absorptivité à partir de l'équation proposée par Amoruso [7] à  $\lambda = 350$  nm et à 300 K aboutit à  $\alpha_{350\text{ nm}} = 0,089$  ce qui est conforme à la valeur moyenne calculée sur la gamme [500 ; 532] nm à 300 K c'est-à-dire  $\alpha_{515\text{ nm}} = 0,083$ .

Bien que les deux équations présentes dans la table démontrent une forte dépendance de l'absorptivité en fonction de la température, nous supposons, en première approximation, que l'absorptivité n'en dépend pas. Dès lors, nous avons fait varier  $\alpha$  de telle sorte que la surface n'atteigne pas la température critique tout en considérant une densité de flux laser maximale de  $2 \cdot 10^{13} \text{ W m}^{-2}$ .

La figure 3.2.2 montre les différents profils de températures pour deux conditions d'absorptivité lorsque  $\varphi_{las}^{max} = 2 \cdot 10^{13} \text{ W m}^{-2}$  :

- si le calcul est effectué en considérant  $\alpha = 0,076$ , la densité de flux d'énergie maximale absorbée par la cible est de  $1,5 \cdot 10^{12} \text{ W m}^{-2}$ . La surface atteint la température de fusion à  $2,9 \cdot 10^{-9} \text{ s}$  et la température critique au bout de  $5,4 \cdot 10^{-9} \text{ s}$  c'est-à-dire peu de temps après le maximum de l'impulsion laser (située à  $4,8 \cdot 10^{-9} \text{ s}$ ). Enfin, à  $10^{-8} \text{ s}$  la température de surface est revenue à 1860 K et les gradients dans la phase liquide sont beaucoup plus faibles que lors de la montée en température.
- si le calcul est effectué en supposant  $\alpha = 0,045$ , la valeur maximale de la densité de flux absorbée par la cible vaut  $9,2 \cdot 10^{11} \text{ W m}^{-2}$ . Dès lors, la surface atteint la température de fusion et  $T = 2900 \text{ K}$  respectivement à  $3,4 \cdot 10^{-9} \text{ s}$  et  $5,3 \cdot 10^{-9} \text{ s}$ . A  $10^{-8} \text{ s}$ , le bain liquide fait  $3 \cdot 10^{-7} \text{ m}$  d'épaisseur et l'écart de température maximale est faible (200 K d'écart entre la surface et la maille située à  $3 \cdot 10^{-7} \text{ m}$  de profondeur).

La figure 3.2.3 montre les évolutions temporelles de la température de surface pour les deux conditions d'absorptivité  $\alpha = 0,045$  et  $\alpha = 0,076$ . Nous en avons déduit les interpo-

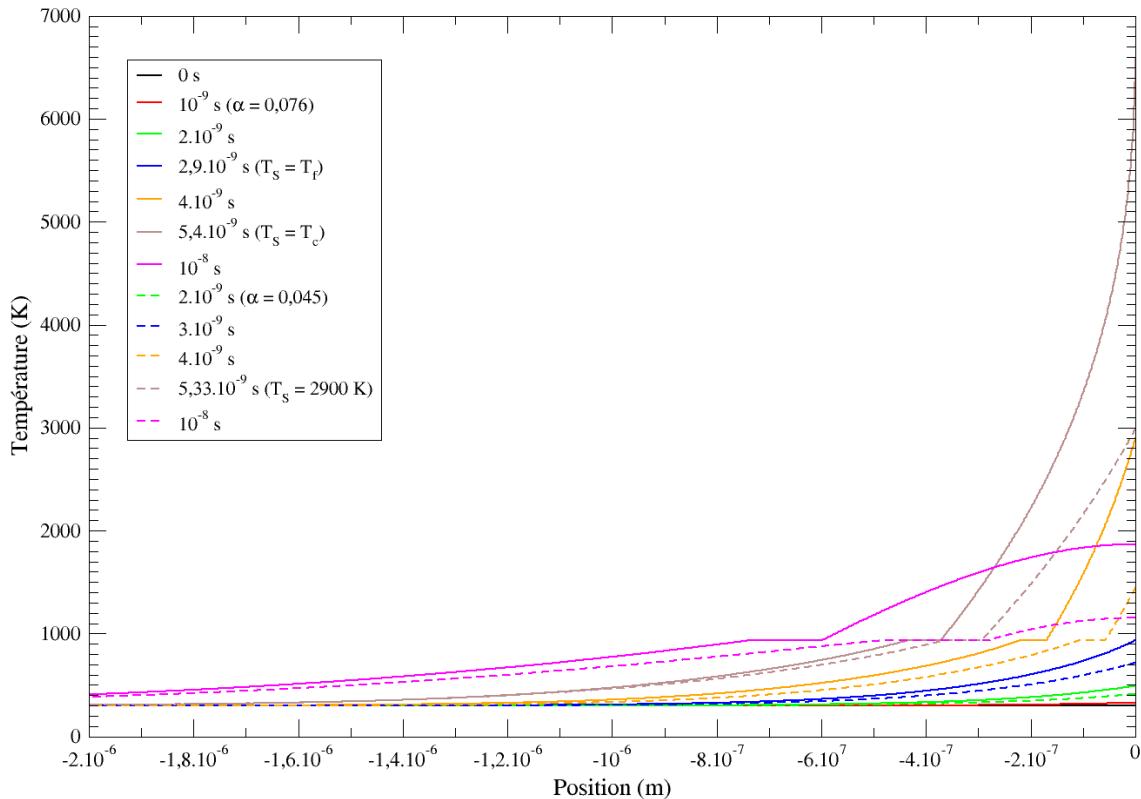


FIGURE 3.2.2 – Profils de température à l’intérieur de la cible lorsque  $\varphi_{las}^{max} = 2.10^{13} \text{ W m}^{-2}$ . En traits pleins lorsque  $\alpha = 0,076$ , en traits tiretés lorsque  $\alpha = 0,045$ .

lations approximatives mais néanmoins satisfaisantes sous la forme de la loi gaussienne :

$$T_S(t) = (T_S^{max} - T_a) \exp \left[ - \left( \gamma \frac{t - \Delta t - 1,2\tau}{\tau} \right)^2 \right] + T_a \quad (3.2.1)$$

où  $T_a = 298 \text{ K}$  et  $\Delta t$  sont respectivement la température ambiante et le décalage temporel. Le coefficient  $\gamma$  conditionne l’élargissement de la gaussienne.

L’équation (3.2.1) permet d’interpoler l’évolution de la température de surface lorsque  $\alpha = 0,076$ . Dans ce cas, le décalage temporel vaut  $\Delta t = 7.10^{-10} \text{ s}$ ,  $\gamma = 2,3$  et  $T_S^{max} = T_c$ . Lorsque  $\alpha = 0,045$ , elle permet d’interpoler l’évolution temporelle de  $T_S$  avec  $\Delta t = 10^{-9} \text{ s}$  et  $\gamma = 2$ . L’équation (3.2.1) a donc la même forme que l’équation (2.1.2) de la page 49 qui a été employée dans le modèle A pour figurer l’évolution temporelle de la surface. Bien que cette interpolation s’éloigne des valeurs prises par la température de surface pour des temps supérieurs à  $7.10^{-9} \text{ s}$ , nous pouvons estimer qu’en première approximation il est judicieux d’employer une forme gaussienne caractérisée par un terme exponentiel égal à celui de l’équation relative à la densité de flux laser comme nous l’avons fait dans le cas du modèle A.

L’étude de la figure 3.2.3 illustre également le temps nécessaire pour que la surface atteigne la température de fusion. Ce décalage temporel de l’ordre de  $10^{-9} \text{ s}$  ( $7.10^{-10} \text{ s}$  lorsque  $\alpha = 0,076$  et  $10^{-9} \text{ s}$  lorsque  $\alpha = 0,045$ ) ne remet pas en cause les résultats présentés dans le chapitre 3.1. En effet, la densité de flux laser transmise à la cible pour ce chauffage est négligeable et ce faible décalage est sans conséquence sur l’évolution du plasma au cours de la phase de recombinaison.

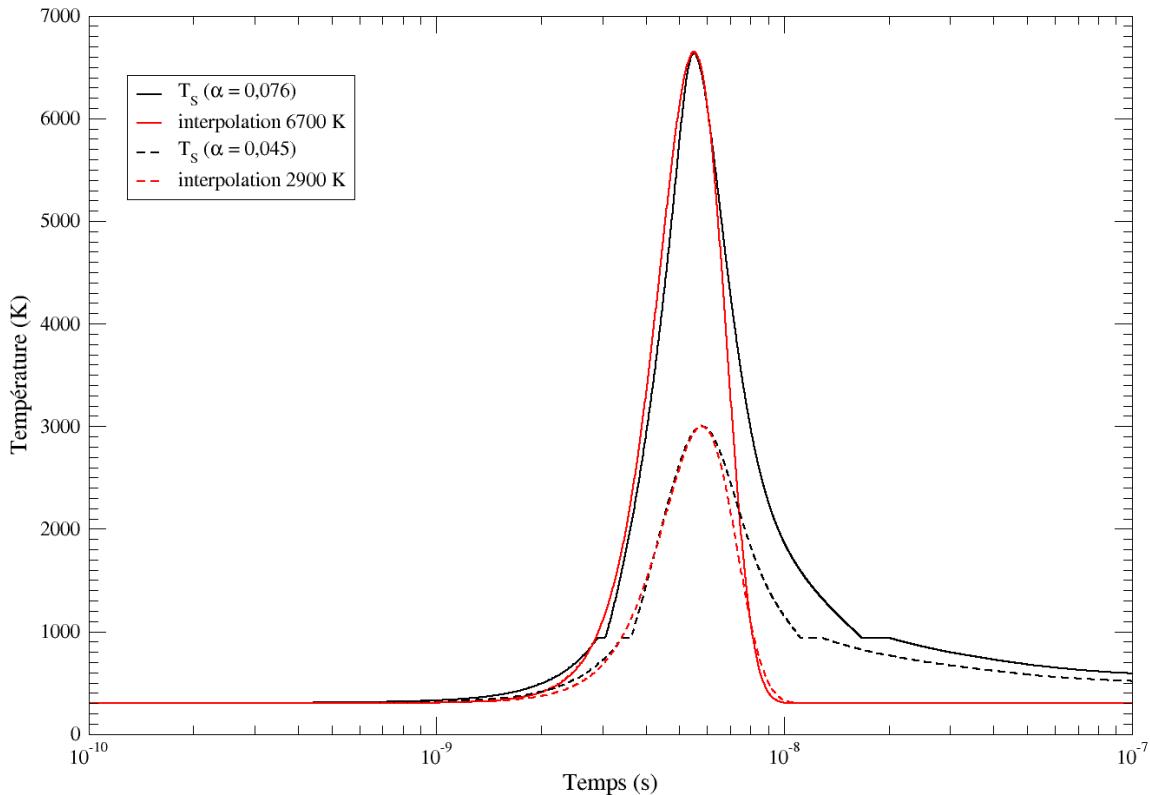


FIGURE 3.2.3 – Évolutions temporelles de la température de surface de la cible lorsque  $\varphi_{las}^{max} = 2.10^{13} \text{ W m}^{-2}$ . En traits pleins lorsque  $\alpha = 0,076$ , en traits tiretés pour  $\alpha = 0,045$ . En rouge, les interpolations obtenues par l'équation (3.2.1).

Afin de prouver la faible influence que peut avoir l'équation (3.2.1) sur le comportement du plasma, nous implémentons cette équation dans le modèle A.

### 3.2.3 Justification du calcul à haute densité de flux laser

L'absorptivité de la cible ayant été intégrée au modèle, la densité de flux nette en interaction avec le plasma est modifiée. En effet, la majeure partie de la densité de flux laser est réfléchie par la surface. Dès lors, il est nécessaire de prendre en compte cette nouvelle interaction.

Le plasma est donc soumis à  $\varphi_{las} + (1 - \alpha)\varphi_{las} = (2 - \alpha)\varphi_{las}$ . Dans le cadre d'une densité de flux laser de  $2.10^{13} \text{ W m}^{-2}$ , la densité de flux totale en interaction avec le plasma vaut  $3.9.10^{13} \text{ W m}^{-2}$ . Outre le fait d'étudier l'influence de la densité de flux laser sur le comportement du plasma dans la sous-section 3.1.2.a, nous pouvons également justifier les calculs effectués à haute densité de flux laser par la forte réflectivité de la cible.

Les résultats présentés dans cette section sont issus du modèle A en utilisant les paramètres suivants :

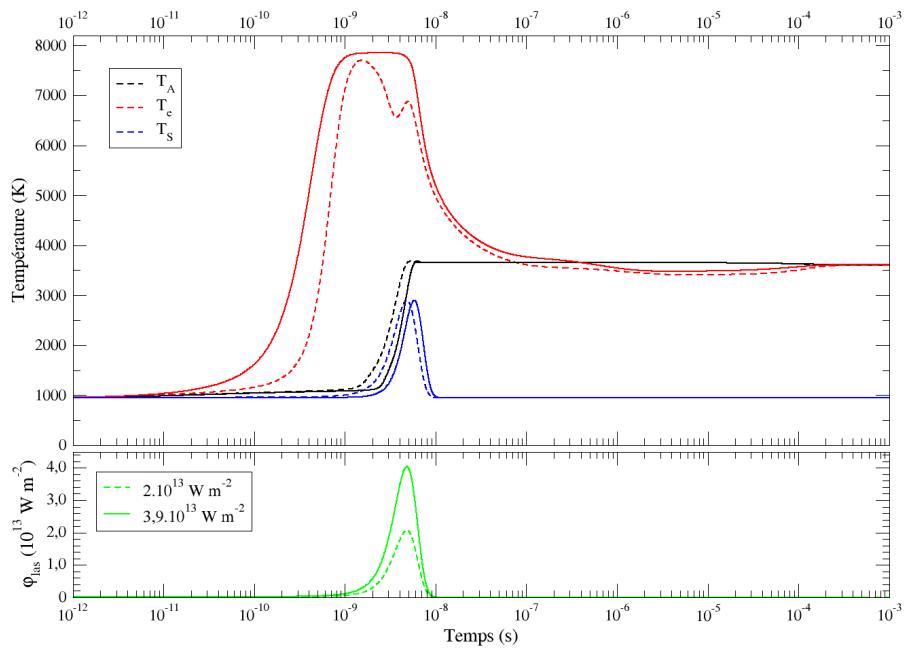


FIGURE 3.2.4 – En haut, évolutions temporelles des températures du plasma,  $T_A$  en noir,  $T_e$  en rouge et  $T_S$  en bleu. En bas, évolutions des densités de flux laser. En traits tiretés pour les conditions du cas-test dans le cas du modèle A, en traits pleins pour les conditions du modèle B.

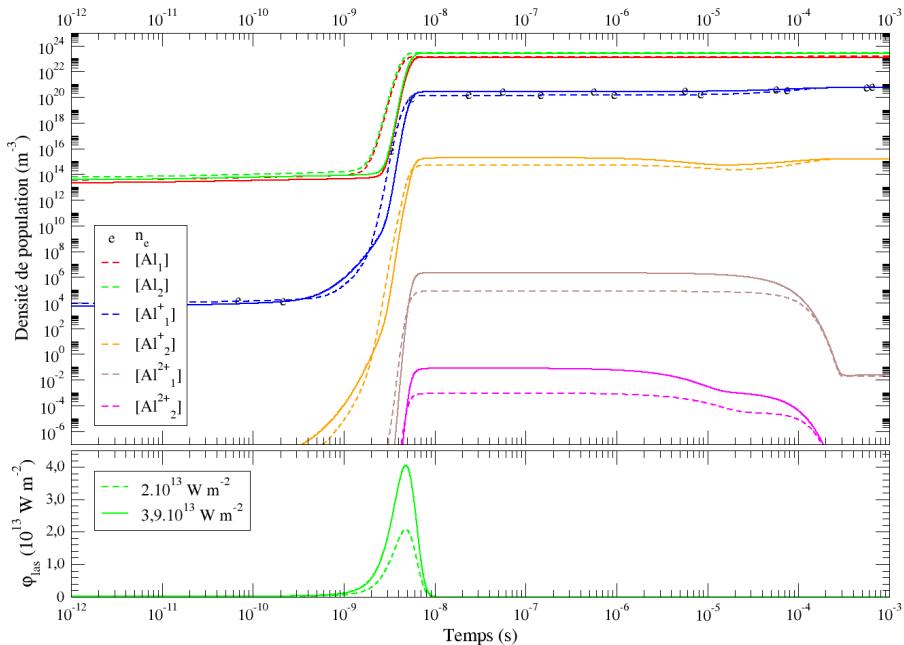


FIGURE 3.2.5 – En haut, évolutions temporelles des densités du plasma. En bas, évolutions des densités de flux laser. En traits tiretés pour les conditions du cas-test dans le cas du modèle A, en traits pleins pour les conditions du modèle B.

- la densité de flux laser interagissant avec le plasma est calculée par :

$$\varphi_{las}(t) = \varphi_{las}^{max} \exp \left[ - \left( 2 \frac{t-1,2\tau}{\tau} \right)^2 \right] (2-\alpha) \quad (3.2.2)$$

où  $\varphi_{las}^{max} = 2.10^{13} \text{ W m}^{-2}$  et  $\alpha = 0,045$ . Cette valeur de l'absorptivité a été choisie malgré son écart avec les valeurs issues de la littérature pour permettre un calcul rapide dans des conditions proches de celles du cas-test dont les résultats ont été présentés dans la section 3.1.1.

- la température de surface est calculée à chaque instant par :

$$T_S(t) = (T_S^{max} - T_f) \exp \left[ - \left( \gamma \frac{t-\Delta t-1,2\tau}{\tau} \right)^2 \right] + T_f \quad (3.2.3)$$

avec  $T_S^{max} = 2900 \text{ K}$ ,  $\gamma = 2$  et  $\Delta t = 10^{-9} \text{ s}$ .

La comparaison des résultats dans ces conditions avec ceux issus du cas-test sur les figures 3.2.4 et 3.2.5 montre peu de différence dans le comportement général du plasma. Nous constatons que la température des électrons augmente plus tôt et qu'elle atteint son maximum (7850 K) à  $10^{-9} \text{ s}$ . Cet effet est dû à l'ionisation multiphotonique sous l'effet d'une plus forte densité de flux ( $3.9.10^{13} \text{ W m}^{-2}$ ). De plus, nous remarquons que la température électronique reste à des températures proches de 7850 K de  $10^{-9} \text{ s}$  à  $5.10^{-9} \text{ s}$ . Au cours de la phase de recombinaison ( $t > 5.10^{-9} \text{ s}$ ) les évolutions de  $T_e$  dans les deux cas sont similaires. Une inversion de température se produit à  $4.10^{-7} \text{ s}$  (elle avait lieu à  $8.10^{-8} \text{ s}$  dans le cadre des hypothèses du chapitre 3.1) puis la thermalisation a lieu à  $2.10^{-4} \text{ s}$  dans les deux cas. Concernant la température des lourds, les évolutions sont identiques, l'une étant décalée de  $10^{-9} \text{ s}$  par rapport à l'autre compte tenu du décalage subi par l'évolution de la température de surface.

La figure 3.2.5 montre tout autant de similitudes entre les deux conditions de calcul. Les densités des espèces chargées sont légèrement supérieures dans les nouvelles conditions mais après  $10^{-4} \text{ s}$ , elles tendent vers des valeurs très proches des densités issues des conditions de référence. Nous retrouvons le décalage temporel sur les évolutions des densités de  $\text{Al}_1$  et  $\text{Al}_2$  entre les deux cas. Enfin, nous remarquons que l'évolution de la densité électronique entre  $3.10^{-10} \text{ s}$  et  $6.10^{-9} \text{ s}$  est moins brutale que dans le cas du cas-test. Ceci est dû à la densité de flux laser durant la première nanoseconde qui est suffisamment forte pour induire une variation de la densité électronique aux temps courts. Notons que cet effet a déjà été observé sur la figure 3.1.15 de la page 109 lorsque nous étudions l'influence de la densité de flux laser.

De manière générale, le comportement du plasma est semblable dans les deux cas. Les quelques différences sont dues au décalage temporel de l'évolution de  $T_S$ , de la plus grande densité de flux laser et de la non-synchronisation entre  $T_S^{max}$  et  $\varphi_{las}^{max}$ .

En conclusion de ce chapitre, les points suivants sont à souligner :

- malgré la modélisation de la situation complète en considérant l'interaction laser/surface et laser/plasma, il est pour l'instant impossible d'obtenir des résultats pour des raisons d'instabilités numériques,
- en dépit de ces difficultés, un couplage fictif a été réalisé en considérant en premier lieu l'interaction laser/surface permettant d'aboutir à une évolution de la température de surface qui peut alors être utilisée comme paramètre d'entrée dans le modèle A,

- une étude sur l'absorptivité de l'aluminium a été réalisé et a mis en évidence une forte réflectivité induisant une interaction laser/plasma avant puis après réflexion. Cette absorptivité vaut 0,083 à température ambiante pour une longueur d'onde voisine de 532 nm,
- les résultats des calculs réalisés dans ce chapitre montrent que le comportement du plasma n'est pas modifié de manière significative, les quelques différences sur les évolutions des températures et des densités étant faibles. Cependant, il est nécessaire de prendre en compte l'interaction laser/surface car elle est la cause d'un retard à l'atteinte par la cible du point de fusion. Le temps d'atteinte de la température de fusion est en moyenne de  $10^{-9}$  s.

# Quatrième partie

## Validation expérimentale



Le modèle collisionnel-radiatif décrit dans la partie 2 ont permis de mettre en évidence certains comportements analysés dans la partie 3. Les résultats les plus marquants sont la très rapide augmentation des températures du plasma, de sa densité électronique et de la densité de population de ses états excités durant l'impulsion laser. Les évolutions ultérieures obéissent à des temps caractéristiques beaucoup plus longs résultant de la cinétique collisionnelle et radiative. Un autre résultat marquant est l'atteinte rapide d'un équilibre d'excitation. Comme nous l'avons précisé dans la partie 1 concernant la description des modèles tentant de reproduire la création du plasma, il existe peu de données expérimentales sur cette phase. Nous avons donc pris le parti de tirer nous-mêmes de l'expérience les données nécessaires à la validation des modèles élaborés durant cette thèse. La difficulté majeure de ce travail expérimental réside dans les temps caractéristiques très courts des phénomènes que nous avons voulu observer : la phase de création du plasma durant approximativement le temps caractéristique  $\tau$  de l'impulsion laser, il est nécessaire de résoudre les grandeurs mesurées à l'échelle de la nanoseconde.

Le plasma produit est essentiellement caractérisé par les propriétés du gaz électronique. Nous nous sommes par conséquent intéressé à l'évolution des niveaux de température et de densité électroniques pendant la phase de création. Trois approches ont été adoptées sur lesquelles est basé le plan de ce chapitre :

- l'étude de l'émission de **raies** spécifiques observées aux temps courts,
- l'analyse de l'émission du **fond continu** et
- la mise en œuvre de la **diffusion Thomson**.

Les deux premières approches ont permis d'aboutir à une estimation assez précise de la densité et de la température électroniques. La troisième n'a pu être menée jusqu'à son terme comme nous l'expliquerons au chapitre 4.3.

Pour réaliser cette validation expérimentale, un dispositif spectroscopique a été mis au point. Il est illustré par la figure 4.0.1. Le spectromètre utilisé est du type Acton SP750i. Il présente une distance focale  $f = 750$  mm et une ouverture de  $f/8$ . Il est muni d'une tour disposant de trois réseaux :

- un réseau blazé dans l'ultraviolet possédant 1800 traits par millimètre,
- un réseau blazé autour de 500 nm avec 1800 traits par millimètre et
- un réseau blazé autour de 750 nm possédant 1200 traits par millimètre.

Sa résolution spectrale est de 0,04 nm avec le réseau à 1800 traits par millimètre pour une fente d'entrée ouverte à 20  $\mu\text{m}$ .

En sortie de ce spectromètre est placée une caméra ICCD du type PIMAX-STI 133 512\*512 dont l'élément photosensible fait 1 cm d'arête. Cet élément est constitué d'une matrice de 512\*512 pixels : chaque pixel a une arête faisant environ 20  $\mu\text{m}$ . Cette matrice est refroidie par effet Peltier afin de réduire le bruit d'ordre thermique. L'ensemble constitué du spectromètre et du photodétecteur est contrôlé via un ordinateur par le logiciel WinSpec32.

La dispersion du réseau dont est muni le spectromètre est horizontale : ainsi, la résolution spatiale ne peut être assurée que dans la direction verticale par l'intermédiaire des lignes de pixels constituant le photodétecteur. Les gradients les plus forts observables lors de la création du plasma sont perpendiculaires à l'échantillon. Nous avons donc pris le parti de placer celui-ci horizontalement afin d'accéder à ces gradients : chaque ligne horizontale de pixels correspond ainsi à une distance fixée par rapport à la surface de la cible. L'extension spatiale du plasma est de l'ordre de quelques millimètres : pour observer aisément ses détails et exploiter davantage la surface du photodétecteur, nous avons choisi d'utiliser un ensemble de lentilles ( $L_1$  et  $L_2$  sur la figure 4.0.1 ayant pour focales

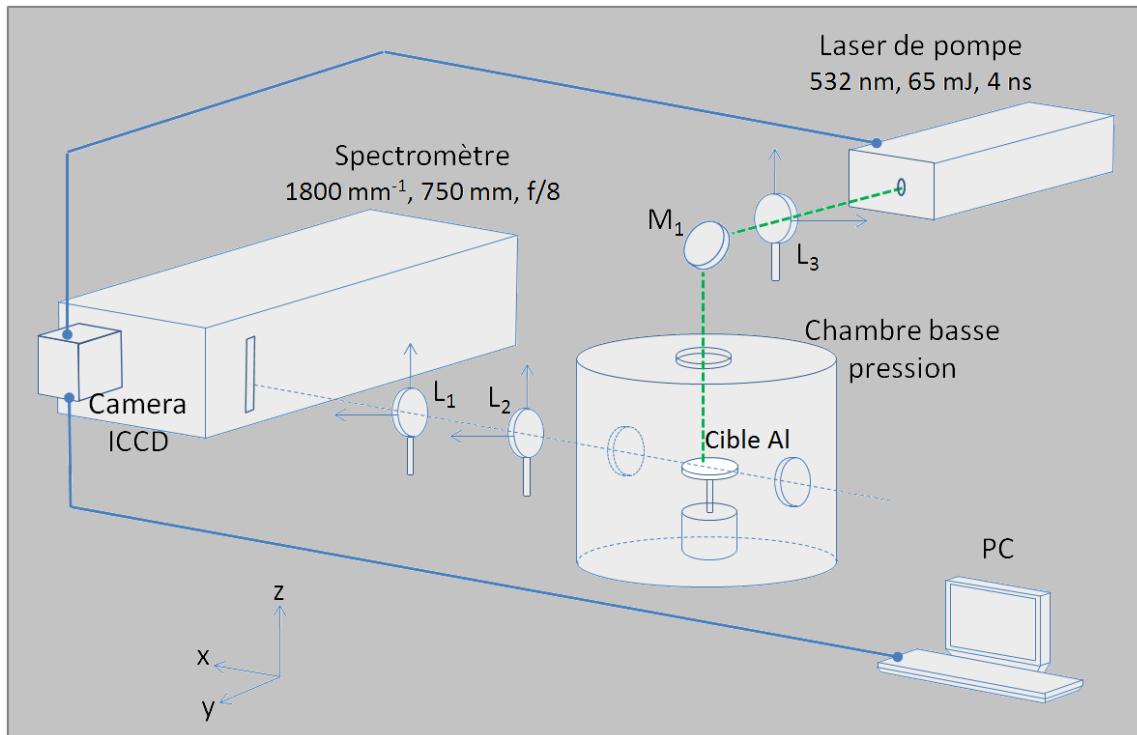


FIGURE 4.0.1 – Banc d'étude en émission du plasma produit par impulsion laser nanoseconde sur une cible d'aluminium à pression réduite.

respectives 500 mm et 250 mm) permettant un grandissement  $\Gamma = 2$ . La hauteur d'environ 20  $\mu\text{m}$  d'une ligne de pixel permet donc une résolution spatiale de 10  $\mu\text{m}$  au sein du plasma.

La cible en aluminium (dont la composition chimique moyenne est donnée dans la table 4.0.1) est placée sur une platine animée d'un mouvement de rotation. La rotation de la cible permet le changement de la position de l'impact du faisceau, celui-ci étant fixe par rapport aux autres éléments : ainsi, un nouveau cratère est formé à chaque impulsion. Le faisceau laser attaque la cible par le haut compte tenu de la disposition précédente. Ses caractéristiques ont été présentées dans la section 2.1.1. A l'aide d'une lentille de 400 nm de focale, le laser est focalisé sur la cible placée dans une chambre étanche permettant de réaliser les expériences dans un vide secondaire de l'ordre de  $10^{-2}$  Pa assuré par une pompe turbomoléculaire munie d'une pompe primaire. Cette lentille permet de focaliser le faisceau sur la cible selon un diamètre apparent de l'ordre de 1 mm comme mentionné dans la section 2.1.1.

Nous verrons dans le chapitre 4.3 que le dispositif précédent est à la base de celui utilisé pour la diffusion Thomson.

Pour s'affranchir de la superposition du rayonnement du second ordre dans la gamme spectrale visible, un filtre passe-haut est utilisé dont la longueur d'onde de coupure est voisine de  $\lambda_F = 600$  nm. Ce filtre est systématiquement utilisé pour l'acquisition des spectres au delà de  $\lambda_F$ . Par ailleurs, la calibration des spectres obtenus est réalisée à l'aide d'une lampe à ruban de tungstène dont la température est de 2250 K (13 A pour 7,2 V). Cette température est peu élevée : le rayonnement émis par cette lampe en dessous de  $\lambda_W = 400$  nm n'est pas observable par notre dispositif avec un rapport signal sur bruit suffisamment élevé. Ainsi, la calibration n'est possible qu'au delà de  $\lambda_W$ . Enfin, nous avons systématiquement évité d'acquérir des spectres autour de la longueur d'onde  $\lambda_{las}$

<b>Appellations</b>	
Norme AFNOR	AU4G
DIN	Al Cu Mg 1
Euronorm	AW - Al Cu 4 Mg Si
Werkstoff	3,1325
AISI	2017A
Autres appellations commerciales	DURAL-FORTAL-2017-AU4G
<b>Composition chimique moyenne</b>	
Cu	3,5 - 4,5 %
Mn	0,40 - 1,00 %
Mg	0,40 - 1,00 %
Fe	0,70 % maxi
Si	0,20 - 0,80 %
Cr	0,10 %
Zn	0,25 %
Ti	traces

TABLE 4.0.1 – Caractéristiques des cibles d'aluminium utilisées.

afin de se prémunir d'éventuels incidents au niveau du photodétecteur résultant de la diffusion du rayonnement de l'impulsion. Ces trois contraintes expliquent pourquoi dans la suite les spectres et leur analyse n'ont trait qu'aux gammes spectrales [400 ; 515] nm et [620 ; 850] nm.



# Chapitre 4.1

## Étude de raies spécifiques observées aux temps courts

Le logiciel WinSpec32 utilisé pour le pilotage de la caméra ICCD et du spectromètre permet un contrôle très strict des temps d'acquisition des signaux mesurés par rapport à l'impulsion laser. Il est donc possible de donner précisément les instants auxquels les spectres sont observés. Les expériences ont été réalisées entre les instants  $t = -5$  ns et  $t = 65$  ns mesurés par rapport au maximum de l'impulsion avec une porte temporelle de 5 ns. Chaque fenêtre spectrale est obtenue à la suite de 10 accumulations sur le capteur CCD afin d'augmenter le rapport signal sur bruit. La figure 4.1.1 illustre les spectres obtenus après calibration sur les 100  $\mu\text{m}$  de plasma proche de l'échantillon.

Nous pouvons constater que le spectre est constitué de groupes de raies élargies ainsi que d'un fond continu. Nous nous sommes intéressés en premier lieu au rayonnement discret ; le continuum est analysé dans le chapitre 4.2. S'agissant des raies, deux phases consécutives sont globalement identifiées :

- **avant  $t = 20$  ns**, les raies résultent presque exclusivement de la désexcitation d'états de  $\text{Al}^{2+}$ ,
- **après  $t = 20$  ns**, celles-ci résultent également de la désexcitation d'états de  $\text{Al}^+$ .

Nous avons regroupé dans la table 4.1.1 les caractéristiques des raies qui sont, selon nous responsables des spectres observés.

La raie de  $\text{Al}^+$  observée à 624,336 nm avant 20 ns résulte très certainement de sa forte probabilité d'émission spontanée, même si la densité de population de l'état concerné est faible. On peut constater sur le spectre des phénomènes d'auto-absorption : autour de 450 nm, le groupe de raies de  $\text{Al}^{2+}$  observables à partir de  $t = 15$  ns disparaît subitement entre 45 et 55 ns. La raie à 747,141 nm due à  $\text{Al}^+$  est la dernière à apparaître dans le spectre.

La succession de l'observation de raies globalement dues d'abord à  $\text{Al}^{2+}$  et ensuite à  $\text{Al}^+$  est une très forte indication du déséquilibre imposé par l'impulsion laser et de la recombinaison qui la suit. L'évolution dans le temps de la luminance des ces raies conforte de plus ce scénario : le groupe de raies dues à  $\text{Al}^{2+}$  situées vers 415 nm présente en effet une augmentation très intense de sa luminance autour de l'instant correspondant à l'impulsion. La luminance varie en effet d'un facteur 100 sur environ 20 ns. Puis cette luminance présente une diminution du même rapport mais cette fois plus lente car elle dure plus de 50 ns avant de retrouver une valeur semblable.

Parmi les raies listées dans la table 4.1.1, certaines présentent des caractéristiques remarquables :

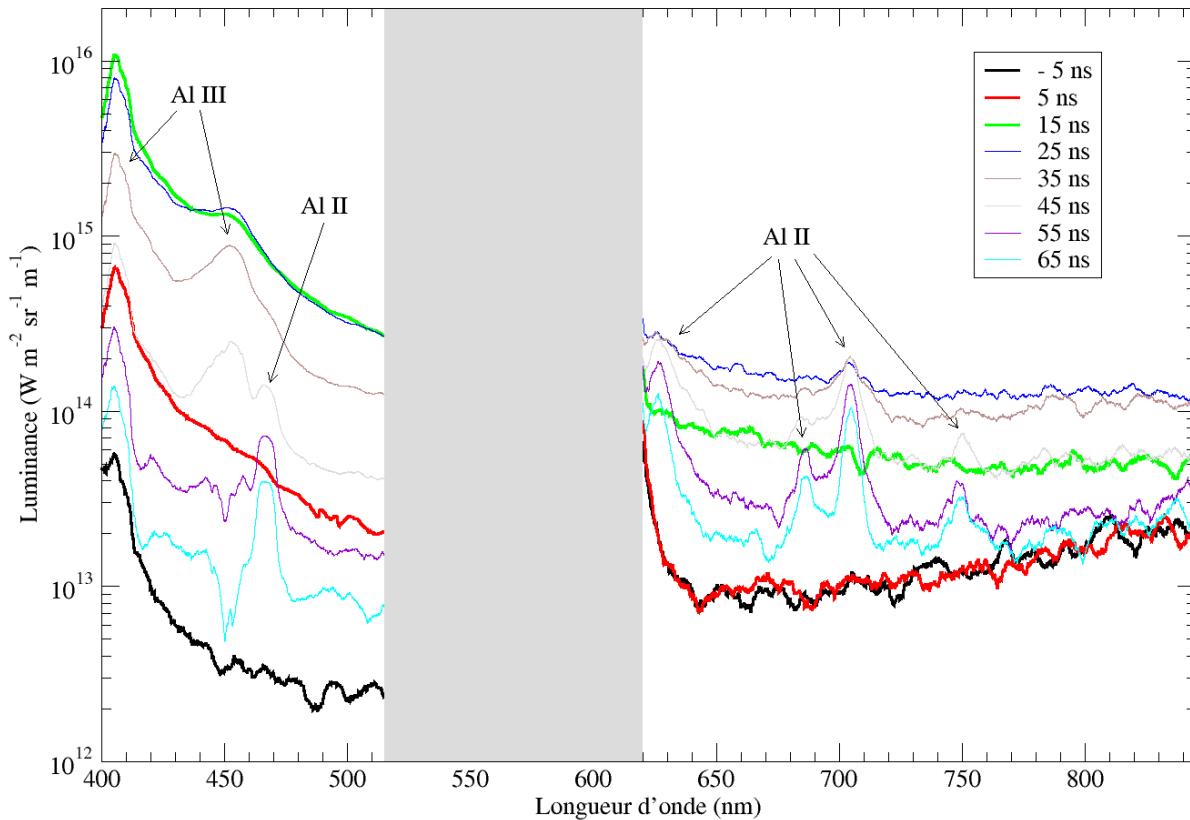


FIGURE 4.1.1 – Évolution en fonction du temps du spectre observé sur la gamme [400 ; 850] nm à proximité de la surface de l'échantillon d'aluminium. La fenêtre grisée correspond à la raie laser et à la gamme spectrale inobservable résultant de l'utilisation du filtre passe-haut. Outre le fond continu, nous observons également des raies attribuées à Al II et Al III.

- les raies à 466,3056 et 747,141 nm sont isolées,
- le groupe de raies situées sur l'intervalle [680 ; 710] nm a très souvent été étudié. Dès lors, beaucoup de données existent dans la littérature.

Compte tenu des fortes densités électroniques mises en évidence dans la partie théorique de ce mémoire, on peut s'attendre à ce que les élargissements Stark  $\Delta\lambda_{Stark}$  et éventuellement les déplacements spectraux Stark  $d_{Stark}$  soient assez forts. Les paramètres permettant de déterminer  $\Delta\lambda_{Stark}$  et  $d_{Stark}$  sont connus pour ce qui concerne les raies précédentes. Une estimation de la densité et de la température électroniques ainsi que leur évolution a donc été déduite et sera présentée dans la suite.

### 4.1.1 Raies de $\text{Al}^+$ à 466,3056 et 747,141 nm

Nous avons discuté dans la sous-section 2.1.4.e des paramètres Stark de manière globale afin de parvenir à une estimation réaliste du facteur d'échappement  $\Lambda(k_0 Z)$  pour la tranche de plasma  $Z$  considérée dans le modèle. Il nous faut être plus précis ici car des raies particulières sont étudiées. La raie à 466,3056 nm est utilisée par Colon *et al.* [47] comme une raie de référence pour déterminer les paramètres Stark d'autres transitions de  $\text{Al}^+$ .

$t(\text{obs})$	$\lambda$ (nm)	Espèces	$A_{ji}$ ( $\text{s}^{-1}$ )	$E_j$ (eV)	$g_j$	$E_i$ (eV)	$g_i$
$t < 20$ ns	414,9915	Al <sup>2+</sup>	$2,19 \cdot 10^8$	23,541674	8	20,554883	6
$t < 20$ ns	414,9968	Al <sup>2+</sup>	$1,46 \cdot 10^7$	23,541635	6	20,554883	6
$t < 20$ ns	415,0173	Al <sup>2+</sup>	$2,04 \cdot 10^8$	23,541635	6	20,555030	4
$t < 20$ ns	451,2564	Al <sup>2+</sup>	$2,15 \cdot 10^8$	20,555030	4	17,808268	2
$t < 20$ ns	452,8942	Al <sup>2+</sup>	$4,26 \cdot 10^7$	20,555030	4	17,818202	4
$t < 20$ ns	452,9194	Al <sup>2+</sup>	$2,54 \cdot 10^8$	20,554883	6	17,818202	4
$t < 20$ ns	624,336	Al <sup>+</sup>	$1,10 \cdot 10^8$	15,062033	7	13,076728	5
$t > 20$ ns	414,9915	Al <sup>2+</sup>	$2,19 \cdot 10^8$	23,541674	8	20,554883	6
$t > 20$ ns	414,9968	Al <sup>2+</sup>	$1,46 \cdot 10^7$	23,541635	6	20,554883	6
$t > 20$ ns	415,0173	Al <sup>2+</sup>	$2,04 \cdot 10^8$	23,541635	6	20,555030	4
$t > 20$ ns	451,2564	Al <sup>2+</sup>	$2,15 \cdot 10^8$	20,555030	4	17,808268	2
$t > 20$ ns	452,8942	Al <sup>2+</sup>	$4,26 \cdot 10^7$	20,555030	4	17,818202	4
$t > 20$ ns	452,9194	Al <sup>2+</sup>	$2,54 \cdot 10^8$	20,554883	6	17,818202	4
$t > 20$ ns	466,3056	Al <sup>+</sup>	$5,30 \cdot 10^7$	13,256459	3	10,59834	5
$t > 20$ ns	623,162	Al <sup>+</sup>	$4,70 \cdot 10^7$	15,0621266	3	13,073079	3
$t > 20$ ns	623,1745	Al <sup>+</sup>	$8,40 \cdot 10^7$	15,062085	5	13,073079	3
$t > 20$ ns	624,307	Al <sup>+</sup>	$3,10 \cdot 10^6$	15,0621266	3	13,076728	5
$t > 20$ ns	624,320	Al <sup>+</sup>	$2,80 \cdot 10^7$	15,062085	5	13,076728	5
$t > 20$ ns	681,669	Al <sup>+</sup>	$1,10 \cdot 10^7$	14,8896234	3	13,071346	1
$t > 20$ ns	682,348	Al <sup>+</sup>	$3,40 \cdot 10^7$	14,8896234	3	13,073079	3
$t > 20$ ns	683,714	Al <sup>+</sup>	$5,70 \cdot 10^7$	14,8896234	3	13,076728	5
$t > 20$ ns	691,793	Al <sup>+</sup>	$1,60 \cdot 10^7$	17,2642211	7	15,472499	5
$t > 20$ ns	691,996	Al <sup>+</sup>	$9,60 \cdot 10^7$	15,0475552	1	13,256459	3
$t > 20$ ns	704,206	Al <sup>+</sup>	$5,90 \cdot 10^7$	13,076728	5	11,31660	3
$t > 20$ ns	705,660	Al <sup>+</sup>	$5,80 \cdot 10^7$	13,073079	3	11,31660	3
$t > 20$ ns	706,364	Al <sup>+</sup>	$5,80 \cdot 10^7$	13,071346	1	11,31660	3
$t > 20$ ns	747,141	Al <sup>+</sup>	$9,40 \cdot 10^7$	15,30839	7	13,649398	5

TABLE 4.1.1 – Raies observées à proximité de la surface de l'échantillon entre les instants  $t = -5$  ns et  $t = 65$  ns mesurés par rapport au maximum de l'impulsion (données issues du NIST).

L'élargissement Stark<sup>1</sup> :

$$\Delta\lambda_{\text{Stark}}(n_e, T_e) = 2\omega(T_e) \frac{n_e}{10^{22}} \quad (4.1.1)$$

et le décalage spectral Stark :

$$d_{\text{Stark}}(T_e) = \left( \frac{d}{\omega} \right)_{T_e} \omega(T_e) \quad (4.1.2)$$

dépendent de deux fonctions de  $T_e$  :  $\omega$  (exprimé en  $10^{-3}$  nm) et  $d/\omega$ . La table 4.1.2 regroupe les valeurs de ces paramètres issues des travaux de Allen *et al.* [5] sur la gamme [5000 ; 40000] K concernant la température électronique. A 20000 K, Heuschkel et Kusch [104] donnent une valeur environ deux fois plus faible que celle proposée par Allen *et al.*.

1. Il est exprimé en nm. La densité électronique est exprimé en  $\text{m}^{-3}$  comme dans l'ensemble de ce mémoire.

$\lambda$ (nm)	$\omega - d/\omega$	$T_e$ (K)								Ref.
		2500	5000	10000	15000	20000	30000	40000	80000	
466,3056	$\omega$	-	7,92	6,15	5,38	4,91	4,33	3,94	-	[5]
466,3056	$\omega$	-	-	-	-	2,6	-	-	-	[104]
681,669	$\omega$	5,42	6,61	8,43	-	11,0	-	13,8	15,4	[88]
681,669	$d/\omega$	1,777	1,730	1,541	-	1,220	-	0,910	0,688	[88]
682,348	$\omega$	5,42	6,61	8,43	-	11,0	-	13,8	15,4	modèle
682,348	$d/\omega$	1,777	1,730	1,541	-	1,220	-	0,910	0,688	modèle
683,714	$\omega$	5,42	6,61	8,43	-	11,0	-	13,8	15,4	[88]
683,714	$d/\omega$	1,777	1,730	1,541	-	1,220	-	0,910	0,688	[88]
691,793	$\omega$	7,20	8,86	11,4	-	14,8	-	18,0	19,6	modèle
691,793	$d/\omega$	1,774	1,704	1,487	-	1,161	-	0,872	0,669	modèle
691,996	$\omega$	7,20	8,86	11,4	-	14,8	-	18,0	19,6	[88]
691,996	$d/\omega$	1,774	1,704	1,487	-	1,161	-	0,872	0,669	[88]
704,206	$\omega$	0,616	1,04	1,74	-	2,68	-	3,71	4,56	[88]
704,206	$d/\omega$	0,856	0,599	0,441	-	0,344	-	0,276	0,225	[88]
705,660	$\omega$	0,616	1,04	1,74	-	2,68	-	3,71	4,56	modèle
705,660	$d/\omega$	0,856	0,599	0,441	-	0,344	-	0,276	0,225	modèle
706,364	$\omega$	0,616	1,04	1,74	-	2,68	-	3,71	4,56	[88]
706,364	$d/\omega$	0,856	0,599	0,441	-	0,344	-	0,276	0,225	[88]
747,141	$\omega$	9,80	12,0	13,6	-	14,7	-	15,8	16,6	[88]
747,141	$d/\omega$	1,334	1,090	0,936	-	0,828	-	0,704	0,559	[88]

TABLE 4.1.2 – Paramètres Stark concernant le demi-élargissement ( $\omega$  donné en  $10^{-3}$  nm) et le décalage relatif ( $d/\omega$ ) en fonction de la température électronique  $T_e$ . La notation *modèle* indique que les paramètres Stark ont été supposés égaux à ceux donnés par Griem pour les raies voisines.

Sur la figure 4.1.2, nous pouvons constater l'allure de la raie aux instants  $t = 55$  ns et  $t = 65$  ns. Vers 450 nm, l'influence des raies de  $\text{Al}^{2+}$  semble jouer un rôle dans la luminance observée au pied : on ne peut donc traiter que la partie de la raie correspondant aux grandes longueurs d'onde où, de plus, le profil est clairement de type lorentzien. Notons au passage qu'il est ainsi nécessaire de s'éloigner de la longueur d'onde centrale pour estimer la luminance maximale de la raie. Pour les deux instants considérés, la largeur à mi-hauteur de la raie est voisine de 8 nm. La densité électronique comprise dans l'intervalle  $[5,05 \cdot 10^{24} ; 1,02 \cdot 10^{25}] \text{ m}^{-3}$  peut donc être estimée selon la valeur de la température électronique qui reste pour l'instant inconnue en utilisant les données de Allen *et al.* Les données de Heuschkel et Kusch mènent à  $n_e = 1,5 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-3}$  si  $T_e$  est voisine de 20000 K.

La raie située à 747,141 nm a également été traitée. Les valeurs des paramètres Stark sont données par Griem [88] et rappelées dans la table 4.1.2. L'élargissement à mi-hauteur est plus difficile à estimer que dans le cas de la raie à 466,3056 nm car sa luminance relative à celle du fond continu est plus faible. Néanmoins, cet élargissement peut être estimé à une valeur comprise entre 8 et 9 nm (cf. figure 4.1.3). A partir de cet élargissement, il est possible d'estimer la densité électronique comprise dans l'intervalle  $[2,4 \cdot 10^{24} ; 4,6 \cdot 10^{24}] \text{ m}^{-3}$  selon la valeur de la température électronique.

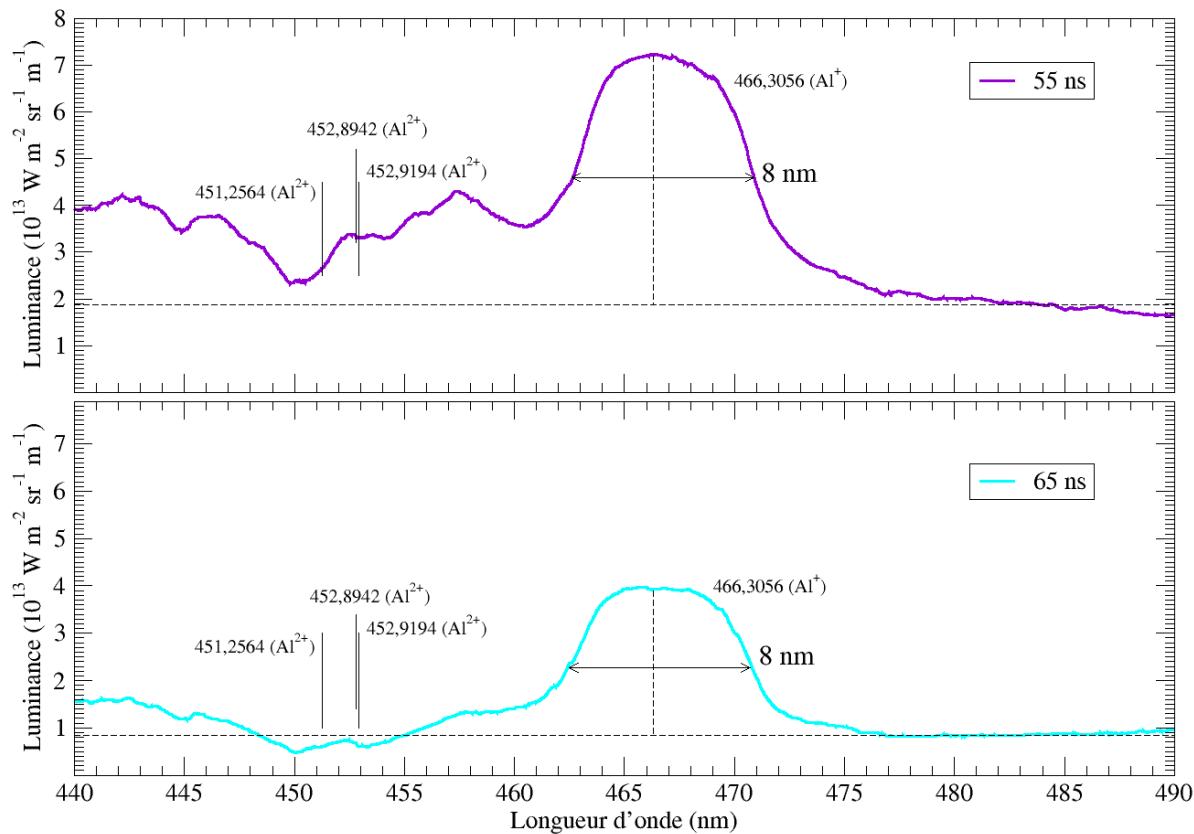


FIGURE 4.1.2 – Raie à 466,3056 nm observée aux instants  $t = 55$  ns et  $t = 65$  ns. L’élargissement à mi-hauteur de cette raie est de 8 nm sans variation notable d’un instant à l’autre. On constate l’influence perturbatrice des raies de  $\text{Al}^{2+}$  autour de 450 nm.

La comparaison des paramètres Stark de la table 4.1.2 montre que les élargissements des raies à 466,3056 et à 747,141 nm évoluent en sens inverse. Plus précisément, le rapport  $\frac{\omega_{747,141}}{\omega_{466,3056}}$  croît à mesure que la température augmente. Les élargissements observés étant du même ordre de grandeur, ce rapport est donc plutôt proche de l’unité. La température électronique semble donc être plutôt faible. Cependant, l’incertitude sur l’élargissement de la raie à 747,141 nm ne permet pas de confirmer ou d’infirmer cette approche.

L’examen de cette raie montre de plus qu’elle présente un certain décalage spectral par rapport à la longueur d’onde en l’absence d’effet Stark. Pour illustrer les incohérences auxquelles mènent les fortes incertitudes de l’élargissement de la raie à 747,141 nm, estimons la température électronique qui en résulte. Le décalage spectral observé est voisin de 1,2 nm en moyenne. Ce décalage présente une forte incertitude, le profil de raie étant très bruité. Compte tenu de l’élargissement  $\Delta\lambda_{\text{Stark}} \approx 8,5$  nm, on en déduit un rapport  $d/\omega$  d’environ 0,3. Les paramètres Stark étant donnés par Griem (cf. table 4.1.2), on constate que la température électronique ainsi estimée est supérieure à 80000 K, ce qui n’a évidemment aucun sens en raison des conditions de l’étude. Ces résultats montrent que les conclusions résultant du traitement de la raie à 466,3056 nm doivent être privilégiées par rapport à celles relatives à la raie à 747,141 nm en l’absence d’autres données des paramètres Stark concernant celle-ci : la densité électronique estimée appartient à l’intervalle  $[5,05 \cdot 10^{24}; 1,02 \cdot 10^{25}] \text{ m}^{-3}$ .

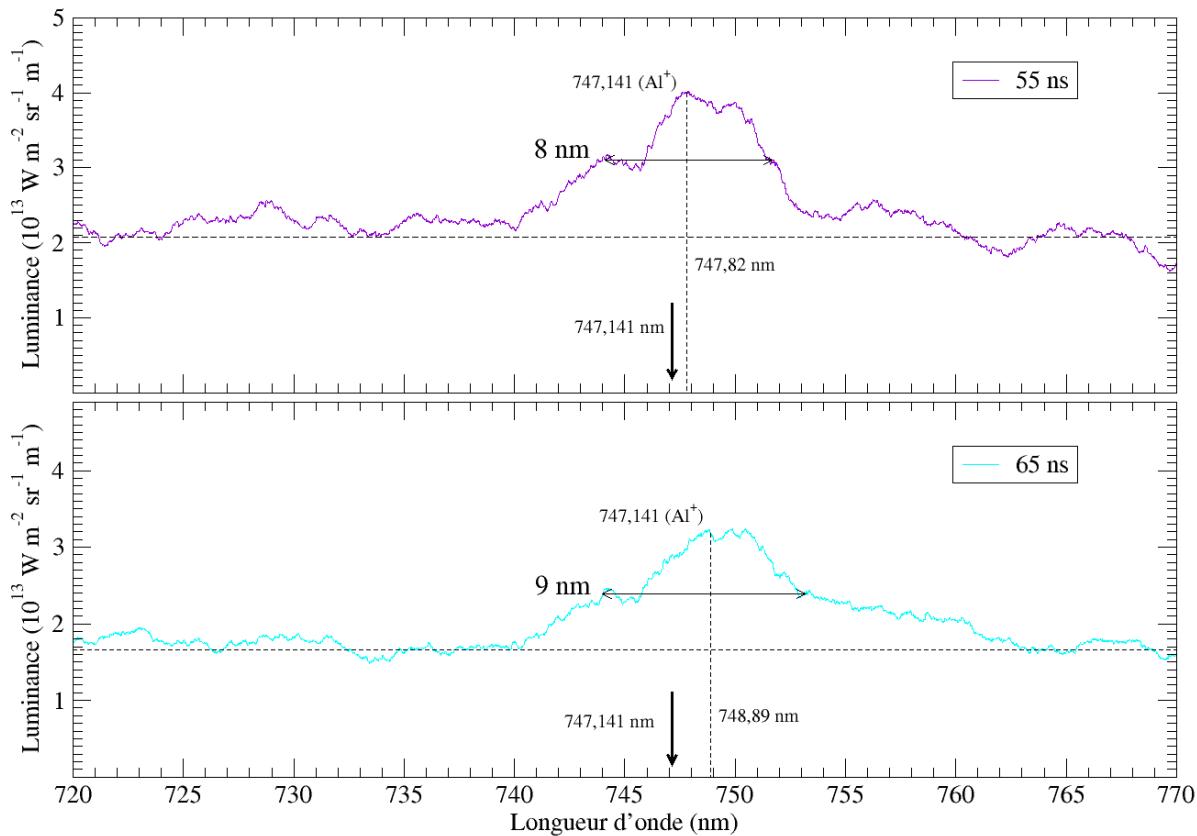


FIGURE 4.1.3 – Raie à 747,141 nm observée aux instants  $t = 55$  ns et  $t = 65$  ns. L’élargissement à mi-hauteur de cette raie est estimé entre 8 et 9 nm selon l’estimation du fond continu auquel la raie se superpose. Un léger décalage de la raie par rapport à la longueur d’onde sans effet Stark peut être observé dans les deux cas.

## 4.1.2 Groupe de raies de $\text{Al}^+$ sur [680 ; 710] nm

Les raies de l’intervalle spectral [680 ; 710] nm, également élargies par effet Stark, se recouvrent les unes les autres menant à un spectre dont on ne peut résoudre les composantes. Les paramètres Stark de ces raies sont intégralement connus (cf. table 4.1.2). De plus, les probabilités de transition et les caractéristiques des niveaux concernés sont également connues, même si quelques différences existent d’une base de données à l’autre en termes notamment de probabilités de transition. Nous avons donc procédé au calcul du spectre synthétique paramétré par la densité et la température électroniques afin d’en obtenir une estimation, les spectres calculés étant comparés aux spectres expérimentaux.

Ces calculs sont basés sur celui du coefficient d’absorption par unité de longueur  $k_0^{(m)}$  à la longueur d’onde centrale  $\lambda_0 + d_{\text{Stark}}^{(m)}$  de la raie  $m$  décalé par effet Stark. Ce coefficient dépend de l’élargissement Stark par l’équation 2.1.69. Le profil Stark de chaque raie  $m$  est Lorentzien et est calculé par :

$$k^{(m)}(\lambda) \equiv k^{(m)}(u) = \frac{k_0^{(m)}}{1 + u^2} \quad (4.1.3)$$

où  $k_0^{(m)}$  prend en compte le décalage spectral Stark  $d_{\text{Stark}}^{(m)}$  et où

$$u = \frac{2}{\Delta \lambda_{\text{Stark}}^{(m)}} \left( \lambda - \lambda_0 - d_{\text{Stark}}^{(m)} \right) \quad (4.1.4)$$

La forme Lorentzienne (4.1.3) mène à des raies dont la base est très élargie : l'effet de la présence d'une raie de ce type se fait donc sentir, en termes de luminance, assez loin de  $\lambda_0$ .

La luminance du corps noir vaut :

$$L^{0(m)}(\lambda) = \frac{2 h c^2}{\lambda^5} \frac{1}{\left( \frac{[Al_i^+] g_j}{[Al_j^+] g_i} \right)_m - 1} \quad (4.1.5)$$

les densités de population  $[Al_i^+]$  et  $[Al_j^+]$  pouvant être choisies a priori librement. Ces densités de population sont supposées homogènes. Le rayonnement émis lors d'une transition  $m$  pouvant être ré-absorbé lors d'une transition d'un autre type  $n \neq m$  en raison du recouvrement des raies que nous cherchons à reproduire, l'équation locale du transfert radiatif appliquée à une longueur  $dx$  de plasma s'écrit :

$$dL(\lambda, x) = \left[ \sum_m k^{(m)}(\lambda) L^{0(m)}(\lambda) - \sum_m k^{(m)}(\lambda) L(\lambda, x) \right] dx \quad (4.1.6)$$

D'autres phénomènes physiques que ceux décrits dans cette section peuvent être responsables de l'émission de lumière dans la même gamme spectrale. Le rayonnement en rapport peut par exemple constituer un fond continu dont la luminance est notée  $L^{fc}$  et dont on supposera la valeur indépendante de  $\lambda$  sur cette gamme. Ce rayonnement peut être également absorbé par les ions  $\text{Al}_i^+$ . En supposant le plasma homogène (les élargissements et décalages spectraux Stark sont alors uniformes), l'intégration de l'équation (4.1.6) sur l'épaisseur  $X$  du plasma mène à :

$$L(\lambda, X) = L^{fc} e^{-\sum_m k^{(m)}(\lambda) X} + \frac{\sum_m k^{(m)}(\lambda) L^{0(m)}(\lambda)}{\sum_m k^{(m)}(\lambda)} \left( 1 - e^{-\sum_m k^{(m)}(\lambda) X} \right) \quad (4.1.7)$$

que l'on peut également écrire :

$$L(\lambda, X) = L^{fc} e^{-\sum_m k^{(m)}(\lambda) X} + \sum_m L_m(\lambda, X) \quad (4.1.8)$$

en définissant la contribution à la luminance complète de la part de la transition  $m$  par :

$$L_m(\lambda, X) = \frac{k^{(m)}(\lambda) L^{0(m)}(\lambda)}{\sum_m k^{(m)}(\lambda)} \left( 1 - e^{-\sum_m k^{(m)}(\lambda) X} \right) \quad (4.1.9)$$

Les calculs ont été réalisés soit en adoptant les données de la table 4.1.1 issues de la base de données du NIST, soit en adoptant celles apparaissant dans la base de données Atomic Line List déjà citée à propos de l'émission spontanée à la sous-section 2.1.4.e

$\lambda$ (nm)	Espèce	$A_{ji}$ ( $s^{-1}$ )	$E_j$ (eV)	$g_j$	$E_i$ (eV)	$g_i$
681,876	$Al^+$	$1,20 \cdot 10^7$	14,889634	3	13,071351	1
682,560	$Al^+$	$3,59 \cdot 10^7$	14,889634	3	13,073085	3
683,900	$Al^+$	$5,95 \cdot 10^7$	14,889634	3	13,076734	5
691,981	$Al^+$	$9,81 \cdot 10^6$	17,264235	7	15,472506	5
692,224	$Al^+$	$1,02 \cdot 10^8$	15,047566	1	13,256465	3
704,402	$Al^+$	$5,59 \cdot 10^7$	13,076734	5	11,316600	3
705,866	$Al^+$	$5,56 \cdot 10^7$	13,073085	3	11,316600	3
706,563	$Al^+$	$5,54 \cdot 10^7$	13,071351	1	11,316600	3

TABLE 4.1.3 – Données issues de la base Atomic Line List pour le calcul du spectre synthétique du groupe de raies à 700 nm.

et listées dans la table 4.1.3. Les élargissements étant importants, la convolution par la fonction d'appareil du spectromètre a donc été négligée. La discussion qui suit traite des spectres expérimentaux observés à l'instant  $t = 55$  ns.

Les spectres obtenus par le calcul présentent les caractéristiques suivantes :

- le niveau de luminance  $L(\lambda, X)$  calculé est essentiellement fonction de la température électronique  $T_e$ ,
- les élargissements de raies sont essentiellement fonction de la densité électronique  $n_e$ .

On peut ainsi retrouver les spectres expérimentaux en jouant alternativement sur ces deux paramètres.

Les premiers spectres présentés en figures 4.1.4(a) et 4.1.4(b) sont obtenus en supposant le plasma à l'équilibre<sup>2</sup> avec  $\sum_i [Al_i^+] = n_e = 1,1 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-3}$  et  $T_e = 15500 \text{ K}$ . L'épaisseur du plasma à l'instant de l'observation est supposée égale à  $300 \mu\text{m}$ , voisine du diamètre du cratère formé lors de l'interaction laser-échantillon et mesuré au binoculaire par comparaison avec des fils de platine de diamètres calibrés. Assez loin du groupe de raies où l'élargissement Stark devient négligeable, la luminance du fond continu peut être estimée : elle vaut environ  $L^{fc} = 1,7 \cdot 10^{13} \text{ W m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ m}^{-1}$ . Ce niveau de luminance et ces conditions permettent l'obtention d'un spectre proche du spectre expérimental dans le cas de l'utilisation de la base de données du NIST [figure 4.1.4 (a)] ou de la base de données Atomic Line List [figure 4.1.4 (b)] : seul le groupe de raies de basse longueur d'onde n'émerge pas suffisamment pour reproduire le spectre expérimental. La comparaison entre spectres synthétique et expérimental pour le groupe de raies situées à 705 nm aurait tendance à montrer que la base de données du NIST est meilleure que la base de données Atomic Line List. Les différences apportées par l'utilisation de l'une ou l'autre des bases de données sont faibles et peuvent être négligées pour ce groupe de raies. Sur ces figures, la luminance du corps noir obtenue à l'aide de l'équation (4.1.7) est également tracée lorsque  $X$  tend vers l'infini. Les irrégularités observées dans sa distribution spectrale résultent des informations issues des bases de données.

Sur ces figures la contribution en luminance due à chaque raie est tracée. Nous constatons que celle des raies de basse longueur d'onde ( $\lambda < 700 \text{ nm}$ ) est très faible : à l'équilibre et dans ces conditions électroniques, il est impossible d'obtenir le spectre expérimental sur cette gamme. Il est donc logique de s'affranchir de l'hypothèse de l'équilibre. L'écriture de la luminance du corps noir sous la forme de l'équation (4.1.5) et du coefficient

2. Le décalage spectral Stark est alors utilisé pour calculer la correction apportée aux niveaux d'énergie apparaissant dans le rapport des densités de population  $[Al_i^+]/[Al_j^+]$  de l'équation (4.1.5).

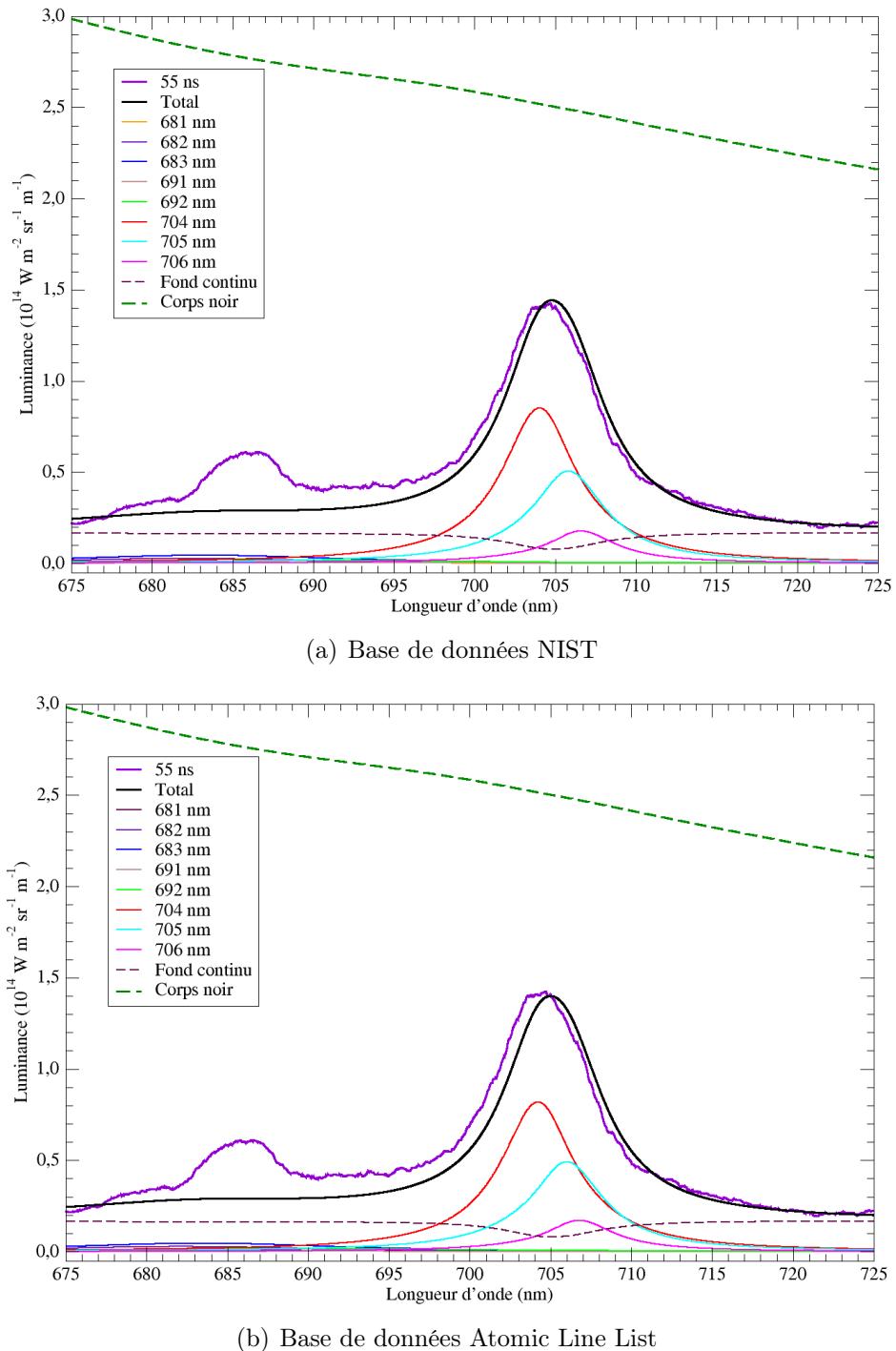


FIGURE 4.1.4 – Comparaison entre le spectre expérimental acquis à l'instant  $t = 55$  ns et le spectre théorique obtenu en supposant le plasma à l'équilibre dans les conditions  $n_e = 1,1 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-3}$  et  $T_e = 15500 \text{ K}$  en adoptant (a) la base de données du NIST et (b) la base de données Atomic Line List. Les contributions des différentes raies intervenant dans le spectre (cf. tables 4.1.1 et 4.1.3) définies par l'équation (4.1.9) sont indiquées ainsi que celle du fond continu.

d'absorption par unité de longueur  $k_0^{(m)}$  sous la forme de l'équation 2.1.69 permet d'introduire facilement des écarts à l'équilibre. En supposant que seuls les états supérieurs des transitions ont une densité de population qui s'écarte de l'équilibre, il est possible de définir le paramètre de déséquilibre  $\eta_m$  par :

$$\eta_m = \left( \frac{[Al_j^+] g_i}{[Al_i^+]_{eq} g_j} \right)_m e^{\left( E_j - E_i - \frac{hc}{\lambda_0^2} d_{Stark} \right)_m / (k_B T_e)} \quad (4.1.10)$$

où  $E_i$ ,  $E_j$  et  $\lambda_0$  sont les caractéristiques des états concernés par la transition  $m$  non perturbées par effet Stark apparaissant dans les tables 4.1.1 et 4.1.3. La définition précédente de  $\eta_m$  permet d'avoir  $\eta_m = 1$  à l'équilibre. D'autre part, si la densité de population  $[Al_j^+]$  du niveau supérieur de la transition  $m$  considérée est plus forte qu'à l'équilibre, la surpopulation en question se traduit par  $\eta_m > 1$ . Cette définition du paramètre de déséquilibre permet d'écrire le coefficient d'absorption par unité de longueur et la luminance du corps noir relatifs à la transition  $m$  sous la forme :

$$k_0^{(m)} = \left[ \frac{(\lambda_0 + d_{Stark})_m^2}{2\pi} \right]^2 \frac{A_{ji}}{c \Delta \lambda_{Stark}^{(m)}} \left[ 1 - \eta_m e^{-\left( E_j - E_i - \frac{hc}{\lambda_0^2} d_{Stark} \right)_m / (k_B T_e)} \right] \left( [Al_i^+]_{eq} \frac{g_j}{g_i} \right)_m \quad (4.1.11)$$

et

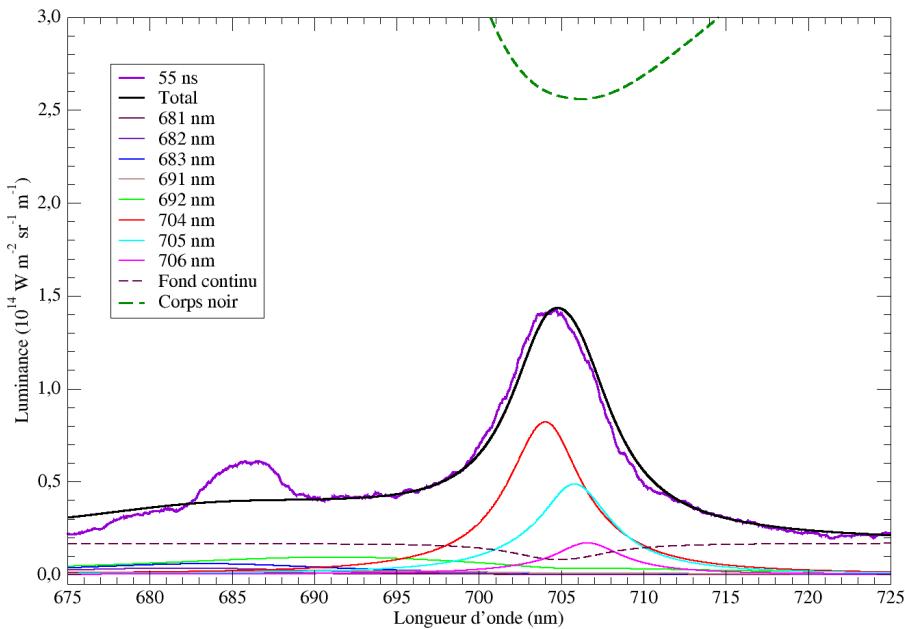
$$L^{0(m)}(\lambda) = \frac{2 h c^2}{\lambda^5} \frac{\eta_m}{e^{\left( E_j - E_i - \frac{hc}{\lambda_0^2} d_{Stark} \right)_m / (k_B T_e)} - \eta_m} \quad (4.1.12)$$

La meilleure interpolation avec les résultats expérimentaux est obtenue dans les conditions suivantes :

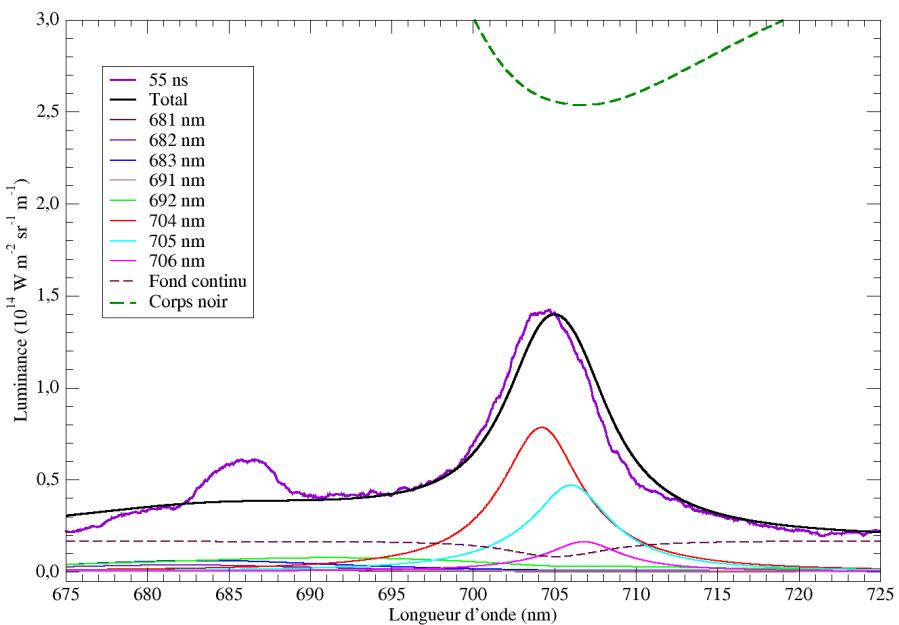
- $n_e = 1,1 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-3}$ ,  $T_e = 15400 \text{ K}$ ,  $X = 300 \text{ } \mu\text{m}$  et  $\eta_{681nm} = \eta_{682nm} = \eta_{683nm} = 1,4$ ,  $\eta_{691nm} = \eta_{692nm} = 6,5$  et  $\eta_{704nm} = \eta_{705nm} = \eta_{706nm} = 1,0$  pour les facteurs de surpopulation si la base de données du NIST est utilisée et
- $n_e = 1,2 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-3}$ ,  $T_e = 15400 \text{ K}$ ,  $X = 300 \text{ } \mu\text{m}$  et  $\eta_{681nm} = \eta_{682nm} = \eta_{683nm} = 1,4$ ,  $\eta_{691nm} = \eta_{692nm} = 5,0$  et  $\eta_{704nm} = \eta_{705nm} = \eta_{706nm} = 1,0$  si la base de données Atomic Line List est utilisée.

Les figures 4.1.5(a) et 4.1.5(b) permettent de comparer le spectre expérimental et les spectres obtenus dans ces conditions selon la base de données utilisée. Dans les deux cas, il n'a pas été possible de retrouver l'évolution de la luminance observée autour de 685 nm. Néanmoins, le spectre autour de 705 nm est remarquablement calculé lorsque la base de données du NIST est utilisée. Les facteurs de surpopulation sont assez faibles : le plasma est donc faiblement déséquilibré.

Le fait de pouvoir calculer un spectre théorique remarquablement proche du spectre expérimental autour de 705 nm en supposant l'équilibre d'excitation à la température des électrons est un indice très fort du fait que le plasma soit réellement dans ces conditions. Il est donc surprenant de ne pas pouvoir obtenir un spectre théorique plus proche du spectre expérimental autour de 685 nm. Tous les essais entrepris pour mieux interpoler le spectre expérimental sont restés infructueux. Ceci résulte du fait qu'en dépit des déplacements spectraux Stark, les raies calculées restent situées spectralement trop loin de 685 nm : dans ces conditions, on ne peut évidemment pas obtenir après calcul un spectre semblable au spectre mesuré. Ces observations peuvent être interprétées de plusieurs manières :



(a) Base de données NIST



(b) Base de données Atomic Line List

FIGURE 4.1.5 – Comparaison entre le spectre expérimental acquis à l'instant  $t = 55$  ns et le spectre théorique obtenu en supposant le plasma en déséquilibre dans les conditions (a)  $n_e = 1,1 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-3}$  et  $T_e = 15400 \text{ K}$  en adoptant la base de données du NIST et (b)  $n_e = 1,2 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-3}$  et  $T_e = 15400 \text{ K}$  en adoptant la base de données Atomic Line List. Les contributions des différentes raies intervenant dans le spectre (cf. tables 4.1.1 et 4.1.3) définies par l'équation (4.1.9) sont indiquées ainsi que celle du fond continu.

- une autre espèce est responsable de la luminance observée à 685 nm

L'échantillon étudié n'est pas fait d'aluminium pur mais est également constitué de cuivre, de manganèse, de magnésium et de fer en faibles concentrations relatives (cf. table 4.0.1). Les ions  $\text{Fe}^+$  présentent des raies sur la gamme spectrale [682 ; 688] nm dont les probabilités de transition sont inférieures à  $8 \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}$  et dont les énergies des niveaux supérieurs des transitions en question sont supérieures à 13 eV. Ces caractéristiques sont très proches de celles des raies de  $\text{Al}^+$  à 705 nm (cf. table 4.1.1). Pour obtenir des niveaux de signaux du même ordre de grandeur que ceux obtenus expérimentalement à 685 nm en supposant un recouvrement du même type que celui obtenu autour de 705 nm, les densités de population des niveaux supérieurs des transitions devraient être du même ordre de grandeur dans les deux cas ou dans un rapport 10 dans les conditions les plus défavorables. L'aluminium utilisé présente une très faible concentration relative en fer (inférieure à 0,70 %) : à moins de concevoir un mode d'évaporation de la surface privilégiant le fer plutôt que l'aluminium résultant par exemple de la structure des grains du matériau de l'échantillon, le fer peut être rejeté comme élément pouvant être responsable de l'émission à 685 nm. Le cuivre est un autre candidat. Les ions  $\text{Cu}^+$  rayonnent autour de 685 nm par désexcitation de niveaux situés vers 19 eV selon des probabilités de transition inférieures à  $1,2 \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}$ . Les niveaux concernés sont donc davantage excités que les niveaux de  $\text{Al}^+$  dont nous avons discuté. De plus, la composition relative n'est pas propice à un niveau de signal aussi élevé que celui observé expérimentalement. Enfin, les données Stark des transitions concernées de  $\text{Fe}^+$  et  $\text{Cu}^+$  restent inconnues autant que le laissent penser les recherches bibliographiques que nous avons menées. Nous ne pouvons donc pas calculer le spectre pour vérifier cette hypothèse.

- les données de l'élargissement et/ou du décalage spectral Stark des raies de  $\text{Al}^+$  sont erronées

Les valeurs adoptées pour les paramètres Stark permettent de reproduire avec beaucoup de précision le spectre expérimental autour de 705 nm : en revanche, autour de 685 nm, l'interpolation est beaucoup moins réussie. Ces paramètres sont peut-être erronés pour les raies situées dans cette gamme spectrale. A défaut d'autres données, on ne peut vérifier cette hypothèse.

Nous avons donc pris le parti d'ignorer dans la suite le rayonnement observé autour de 685 nm en ne considérant que les niveaux de luminance observés à 680 et 690 nm. Dans ces conditions, le plasma peut être qualifié de faiblement déséquilibré à l'instant  $t = 55 \text{ ns}$ , même si le facteur de déséquilibre des transitions vaut soit 1,4 soit 6 en moyenne selon les transitions concernées. En tout état de cause, la densité électronique est d'environ  $1,1 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-3}$  et la température électronique est voisine de 15400 K.

On peut désormais revenir sur les estimations de la section 4.1.1 obtenues par étude de l'élargissement de la raie isolée de  $\text{Al}^+$  à 466,3056 nm. Le niveau précédent de densité électronique est remarquablement proche de celui alors obtenu. De plus, nous disposons ici de la température électronique dont le niveau voisin de 15400 K permet de vérifier a posteriori la cohérence. Les données de Allen *et al.* [5] permettent d'estimer à 12 nm l'élargissement Stark de la raie à 466,3056 nm dans ces conditions. Les données de Heuschkel et Kusch [104] ne permettent pas le calcul direct car seule la valeur de  $\omega(20000 \text{ K})$  est connue. Néanmoins en supposant un rapport indépendant de  $T_e$  entre les paramètres donnés dans ces deux références (ceci constitue l'hypothèse la plus simple), on en déduit alors que l'élargissement Stark à 15400 K est voisin de 6 nm. Les 8 nm obtenus expérimentalement sont situés entre ces deux estimations : la cohérence globale des résultats

Instant $t$ (ns)	$n_e$ ( $\text{m}^{-3}$ )	$T_e$ (K)	$X$ ( $\mu\text{m}$ )	$L^{fc}$ ( $\text{W m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ m}^{-1}$ )	$\eta_{682\text{nm}}$	$\eta_{691\text{nm}}$	$\eta_{705\text{nm}}$
25	$1,1 \cdot 10^{25}$	15200	300	$1,25 \cdot 10^{14}$	2,0	12,0	1,0
35	$1,1 \cdot 10^{25}$	16000	300	$9,0 \cdot 10^{13}$	2,0	8,5	1,0
45	$1,25 \cdot 10^{25}$	16200	300	$4,0 \cdot 10^{13}$	1,0	9,5	1,0
55	$1,1 \cdot 10^{25}$	15400	300	$1,7 \cdot 10^{13}$	1,4	6,5	1,0
65	$1,05 \cdot 10^{25}$	14700	300	$1,2 \cdot 10^{13}$	1,0	5,0	1,0

TABLE 4.1.4 – Évolution temporelle des caractéristiques électroniques du plasma obtenues par confrontation entre spectre synthétique (calculé avec les données du NIST) du groupe de raies de  $\text{Al}^{2+}$  de l'intervalle spectral [680 ; 710] nm et spectre expérimental.

est ainsi vérifiée.

Ainsi, à l'instant  $t = 55$  ns, le plasma est caractérisé par les données de la table 4.1.4.

La procédure précédente a été menée de manière systématique entre les instants  $t = 25$  ns et  $t = 65$  ns en utilisant la base de données du NIST, l'accord avec les spectres expérimentaux étant légèrement meilleur qu'en utilisant la base Atomic Line List et les différences induites par l'emploi de celle-ci étant mineures. Les paramètres obtenus sont consignés dans la table 4.1.4. L'épaisseur  $X$  du plasma n'a pas été modifiée, celle-ci correspondant au diamètre de la zone chauffée par l'impulsion laser pendant les 10 premières nanosecondes. Le groupe de raies à 705 nm émerge faiblement du fond continu à  $t = 25$  ns. Les valeurs des paramètres qui en résultent ont été déterminées malgré tout. Cependant, leur incertitude doit être considérée comme importante. Aussi, l'instant  $t = 25$  ns n'est pas pris en compte dans la discussion qui suit, même si les valeurs en question présentent des ordres de grandeur cohérents avec ceux relatifs aux instants ultérieurs.

On constate que la densité électronique varie peu. Son influence se mesurant essentiellement à l'élargissement global du groupe de raies à 705 nm, la faible variation de cet élargissement conduit à de faibles variations de la densité électronique ainsi déterminée. La variation de la température électronique est en revanche plus significative. La luminance du spectre en est directement fonction : sa diminution importante résulte de celle de  $T_e$ . Le plasma passe ainsi de 16000 K à 14500 K environ en l'espace de 30 ns. Enfin, les variations des facteurs de surpopulation indiquent une tendance globale de l'évolution du plasma vers l'équilibre d'excitation.

La procédure que nous avons adoptée ici ne peut être appliquée aux instants  $t < 25$  ns : en effet, aucune raie de  $\text{Al}^{2+}$  n'est alors observable sur la gamme spectrale [680 ; 710] nm. Seul un fond continu de luminance très variable est observé. Aux temps très courts ( $t < 15$  ns), hormis des raies de  $\text{Al}^{2+}$  en partie masquées par la fenêtre d'inobservabilité, le spectre ne contient qu'un seul groupe de raies situées autour de 410 nm dues à  $\text{Al}^{2+}$ . En dépit de recherches bibliographiques poussées, nous n'avons pas trouvé les paramètres Stark relatifs aux transitions concernées. Néanmoins, des théories simplifiées de l'élargissement Stark existent : nous en avons mis en œuvre afin de tirer quelques informations du rayonnement observé dans cette gamme spectrale.

### 4.1.3 Groupe de raies de $\text{Al}^{2+}$ sur [395 ; 420] nm

La table 4.1.5 donne les caractéristiques des raies de  $\text{Al}^{2+}$  appartenant à ce groupe fournies par la base Atomic Line List. La figure 4.1.6 présente le diagramme énergétique

$\lambda$ (nm)	$A_{ji}$ ( $s^{-1}$ )	$E_j$ (eV)	$g_j$	$C_j$	$E_i$ (eV)	$g_i$	$C_i$
398,1223	$1,39 \cdot 10^7$	26,532068	14	8f	23,417843	6	5d
398,1326	$9,27 \cdot 10^6$	26,532068	14	8f	23,417924	4	5d
408,3604	$1,80 \cdot 10^7$	25,159081	2	7s	22,122934	2	5p
408,9765	$3,58 \cdot 10^7$	25,159081	2	7s	22,127508	4	5p
414,3511	$1,10 \cdot 10^7$	26,533896	18	8g	23,541645	6	5f
414,3566	$1,47 \cdot 10^7$	26,533896	18	8g	23,511685	8	5f
415,1083	$2,00 \cdot 10^8$	23,541685	8	5f	20,554892	6	4d
415,1138	$1,33 \cdot 10^7$	23,541645	6	5f	20,554892	6	4d
415,1343	$1,87 \cdot 10^8$	23,541645	6	5f	20,555039	4	4d
415,2091	$1,06 \cdot 10^7$	26,534232	22	8h	23,548164	10	5g

TABLE 4.1.5 – Données issues de la base Atomic Line List pour le calcul du spectre synthétique du groupe de raies de  $Al^{2+}$  sur la gamme spectrale [395 ; 420] nm.  $C_{i,j}$  figure la configuration du dernier électron.

des niveaux concernés. Cette base de données a été préférée ici à la base du NIST en raison de sa plus grande richesse en termes de probabilités de transition sur la gamme spectrale [395 ; 420] nm.

Les élargissements Stark de ces raies ont été déterminés en fonction de la densité électronique  $n_e$  par l'approche semi-empirique modifiée qui a été développée par Heading *et al.* [100]. Cette approche conduit à l'élargissement à mi-hauteur par effet Stark sous la forme :

$$\Delta\lambda_{Stark} = 0,886 \cdot 10^{-20} \frac{\lambda^2 n_e}{\sqrt{T_e}} \left( \overline{R_{ii}^2} + \overline{R_{jj}^2} \right) \quad (4.1.13)$$

autrement dit au demi-élargissement à mi-hauteur pour  $n_e = 10^{22} m^{-3}$  :

$$\omega(T_e) = 44,3 \frac{\lambda^2}{\sqrt{T_e}} \left( \overline{R_{ii}^2} + \overline{R_{jj}^2} \right) \quad (4.1.14)$$

Dans ces équations,  $\overline{R_{ii}^2}$  et  $\overline{R_{jj}^2}$  sont les carrés moyennés des éléments diagonaux de la matrice de position des électrons (carrés de la distance moyenne des électrons au noyau de l'ion aluminium) lorsque l'ion est dans la configuration  $C_i$  et  $C_j$ . Ces carrés sont donnés par :

$$\overline{R_{kk}^2} = \frac{1}{2} \frac{n_k^2}{Z^2} \left[ 5n_k^2 + 1 - 3\ell_k(\ell_k + 1) \right] \quad (4.1.15)$$

où  $n_k$  est le nombre quantique principal effectif du niveau  $k$  donné par :

$$n_k = Z \sqrt{\frac{E_H}{E^+ - E_k}} \quad (4.1.16)$$

avec  $Z$  la charge de l'ion. Ici,  $E_H$  et  $E^+$  sont les énergies d'ionisation de l'atome d'hydrogène et de l'ion  $Al^{2+}$ . Le nombre quantique secondaire  $\ell_k$  est donné par la configuration électronique de l'état de l'ion (rappelée dans la table 4.1.5).

Les équations (4.1.13), (4.1.14) et (4.1.15) sont valables tant que :

$$\frac{n_k^3}{Z^2} T_e \leq 420000 K \quad (4.1.17)$$

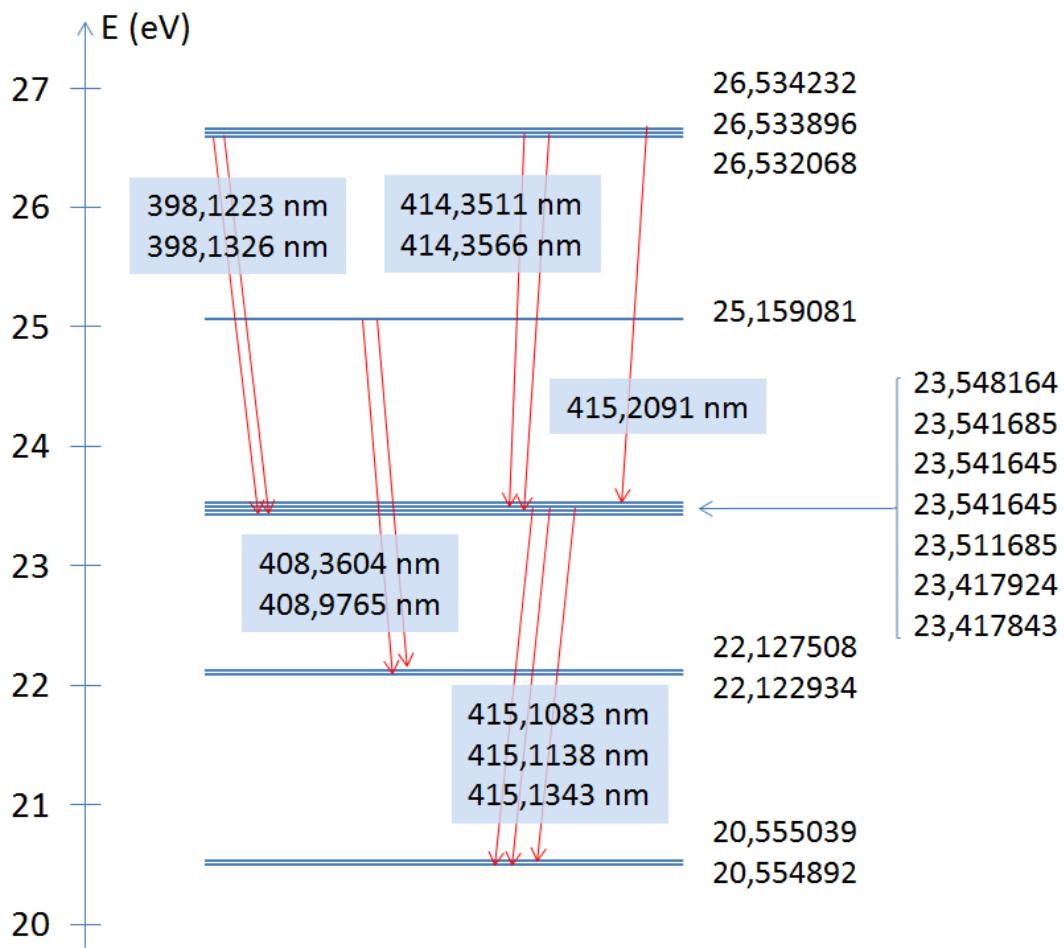


FIGURE 4.1.6 – Diagramme énergétique des niveaux de  $\text{Al}^{2+}$  impliqués dans l'émission du groupe de raies sur la gamme spectrale  $[395 ; 420]$  nm.

donc tant que :

$$n_k^3 T_e \leq 1,7 \cdot 10^6 K \quad (4.1.18)$$

dans le cas présent avec  $Z = 2$ .

Les nombres quantiques principaux effectifs les plus grands impliqués dans les transitions du groupe de raies de la gamme spectrale  $[395 ; 420]$  nm sont égaux à  $5,33^3$ . La théorie précédente est donc applicable tant que :

$$T_e \leq 11200 K \quad (4.1.19)$$

Nous n'oublierons pas cette limite lors de la critique des résultats.

Avant d'appliquer cette théorie simplifiée au cas des ions  $\text{Al}^{2+}$  impliqués dans les transitions produisant le groupe de raies de la gamme spectrale  $[395 ; 420]$  nm, nous avons souhaité la tester en confrontant ses résultats aux données de Griem de la table 4.1.2 pour les transitions de la gamme spectrale  $[680 ; 710]$  nm dans les conditions de l'équation (4.1.17). La table 4.1.6 montre que l'accord est plutôt bon autour de 10000 K pour les transitions appartenant à la gamme spectrale  $[681 ; 691]$  nm. Pour celles appartenant à la

3. L'énergie d'ionisation de l'ion  $\text{Al}^{2+}$  mentionnée dans la base de données du NIST est 28,448 eV.

$\lambda$ (nm)	$\omega_G - \omega_H$	$T_e$ (K)							Ref.
		2500	5000	10000	20000	40000	80000		
681,669	$\omega_G$	5,42	6,61	8,43	11,0	13,8	15,4	[88]	
681,669	$\omega_H$	16,5	11,7	8,26	5,84	4,13	2,92	[100]	
682,348	$\omega_G$	5,42	6,61	8,43	11,0	13,8	15,4	modèle	
682,348	$\omega_H$	16,6	11,7	8,28	5,85	4,14	2,93	[100]	
683,714	$\omega_G$	5,42	6,61	8,43	11,0	13,8	15,4	[88]	
683,714	$\omega_H$	16,6	11,8	8,31	5,88	4,16	2,94	[100]	
691,793	$\omega_G$	7,20	8,86	11,4	14,8	18,0	19,6	modèle	
691,793	$\omega_H$	18,9	13,3	9,44	6,67	4,72	3,34	[100]	
691,996	$\omega_G$	7,20	8,86	11,4	14,8	18,0	19,6	[88]	
691,996	$\omega_H$	18,5	13,1	9,23	6,53	4,62	3,26	[100]	
704,206	$\omega_G$	0,616	1,04	1,74	2,68	3,71	4,56	[88]	
704,206	$\omega_H$	7,64	5,40	3,82	2,70	1,91	1,35	[100]	
705,660	$\omega_G$	0,616	1,04	1,74	2,68	3,71	4,56	modèle	
705,660	$\omega_H$	7,67	5,42	3,83	2,71	1,91	1,36	[100]	
706,364	$\omega_G$	0,616	1,04	1,74	2,68	3,71	4,56	[88]	
706,364	$\omega_H$	7,68	5,43	3,84	2,91	1,92	1,36	[100]	

TABLE 4.1.6 – Confrontation entre les données de Griem [88] ( $\omega_G$ ) reprises de la table 4.1.2 et la théorie semi-empirique modifiée développée par Heading *et al.* [100] ( $\omega_H$ ) concernant les demi-élargissements Stark à  $n_e = 10^{22} \text{ m}^{-3}$  exprimés en  $10^{-3} \text{ nm}$  pour des raies de  $\text{Al}^+$ . La notation *modèle* indique que les paramètres Stark ont été supposés égaux à ceux donnés par Griem pour les raies voisines.

gamme [704 ; 706] nm, l'accord est bon pour les températures voisines de 20000 K. Indépendamment des valeurs à proprement parler, l'approche semi-empirique de Heading *et al.* souffre d'un défaut de sensibilité de  $\omega$  vis-à-vis de  $T_e$ . Alors que toutes les raies prises en compte présentent selon Griem une dérivée  $d\omega/dT_e > 0$ , l'équation (4.1.13) montre que  $d\omega/dT_e < 0$ . Nous reviendrons également sur ce comportement dans la suite.

Revenons au calcul du spectre synthétique de la gamme [395, 420] nm. Supposons qu'à l'instant  $t = -5$  ns, la température et la densité électroniques soient identiques à ce que nous avons déterminé antérieurement aux instants  $t > 35$  ns (15500 K,  $10^{25} \text{ m}^{-3}$ ), même s'il y a toute chance pour que la densité électronique soit inférieure, le plasma étant en phase de création. En adoptant la valeur  $8 \cdot 10^{19} \text{ m}^{-3}$  pour la densité du niveau de  $\text{Al}^{2+}$  situé à 23,541645 eV (niveau supérieur des transitions à 415,1138 et 415,1343 nm) et en supposant de plus l'équilibre d'excitation autour de ce niveau réalisé selon  $T_e$ , on obtient le spectre synthétique de la figure 4.1.7. La valeur de la densité choisie permet de retrouver l'ordre de grandeur de la luminance maximale observée sur l'intervalle spectral [395 ; 420] nm. Ce spectre conduit aux remarques suivantes :

- seules les raies autour de 415 nm étant observées et celles à 398 nm n'émergeant pas du spectre, l'ensemble est décalé par rapport à la longueur d'onde  $\lambda = 405$  nm où la luminance maximale est observée,
- l'élargissement de cet ensemble de raies est trois fois inférieur à celui observé expérimentalement.

Dans le cadre des hypothèses adoptées, aucune valeur des paramètres électroniques ne permet de concilier l'apparition des raies de longueurs d'onde voisines de 398 nm, la

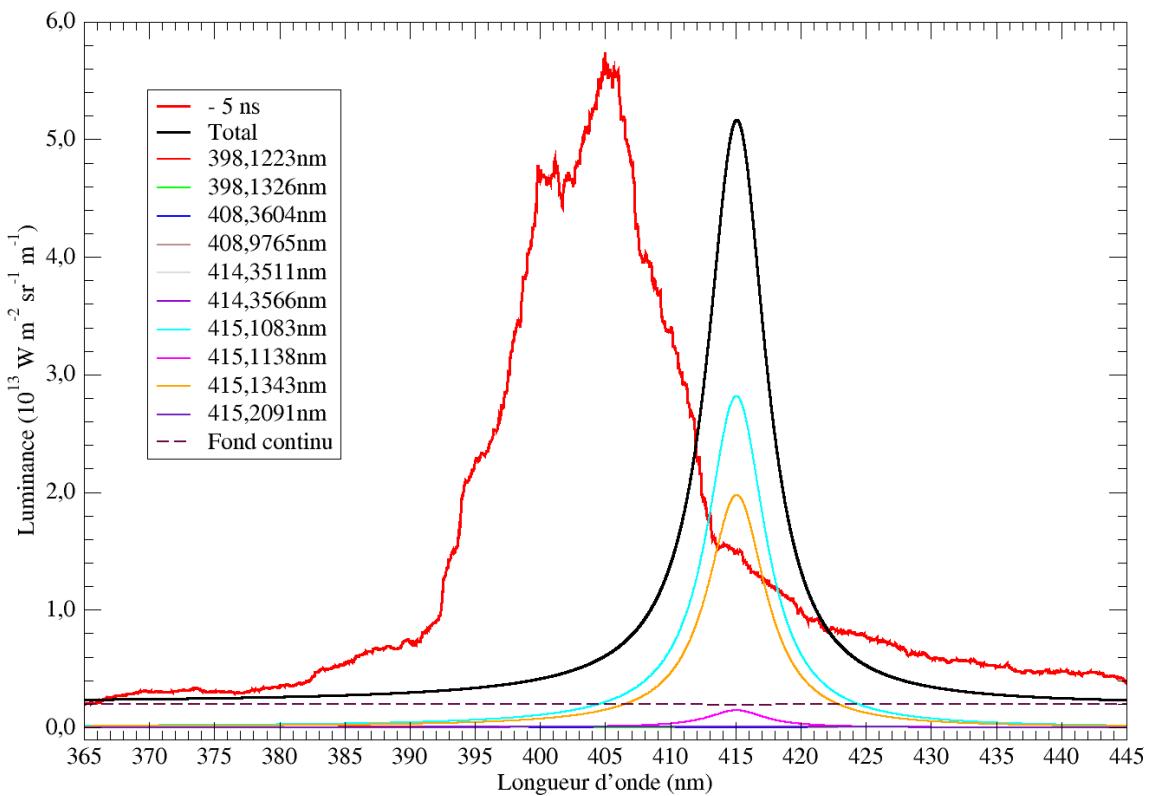


FIGURE 4.1.7 – Groupe de raies sur l'intervalle spectral [395 ; 420] nm observées à l'instant  $t = -5$  ns et comparaison avec le spectre synthétique calculé en supposant l'équilibre d'excitation entre les niveaux impliqués ( $n_e = 10^{25} \text{ m}^{-3}$  et  $T_e = 15500 \text{ K}$ ). Les contributions des différentes raies intervenant dans le spectre (cf. table 4.1.5) définies par l'équation (4.1.9) sont indiquées ainsi que celle du fond continu.

largeur à mi-hauteur de l'ensemble et la luminance observées. La conclusion est que le plasma est évidemment en déséquilibre à l'instant considéré, l'interaction avec l'impulsion laser commençant à se produire et les collisions avec les électrons n'ayant pas encore eu le temps de coupler les états excités. Cette conclusion est renforcée par le fait que la densité choisie pour retrouver la luminance mesurée est 60 fois plus élevée que celle obtenue en supposant un équilibre de Boltzmann jusqu'au niveau fondamental à la température  $T_e$  (on trouve en effet une densité de  $1,3 \cdot 10^{18} \text{ m}^{-3}$  dans ce cas pour le niveau à 23,541645 eV).

Nous avons donc cherché à retrouver le spectre expérimental en nous affranchissant de l'hypothèse d'équilibre précédente en rendant par conséquent complètement indépendantes les densités de population des états impliqués. Cette recherche est malheureusement restée infructueuse. Indépendamment des incertitudes concernant les élargissements Stark calculés par la théorie simplifiée que nous avons développée précédemment, cette recherche a buté sur l'incompatibilité de l'allure du spectre et des données élémentaires utilisées pour le reconstituer. En effet, l'analyse du diagramme énergétique de la figure 4.1.6 montre que :

- augmenter la luminance des raies à 398 nm nécessite d'augmenter le niveau de densité de population des états d'énergie 26,53 eV,
- cette augmentation induit celle de la luminance à 414 nm qui peut alors être réduite en augmentant les densités de population des états d'énergie 23,5 eV,
- augmenter la densité de population des états d'énergie 23,5 eV mène alors à aug-

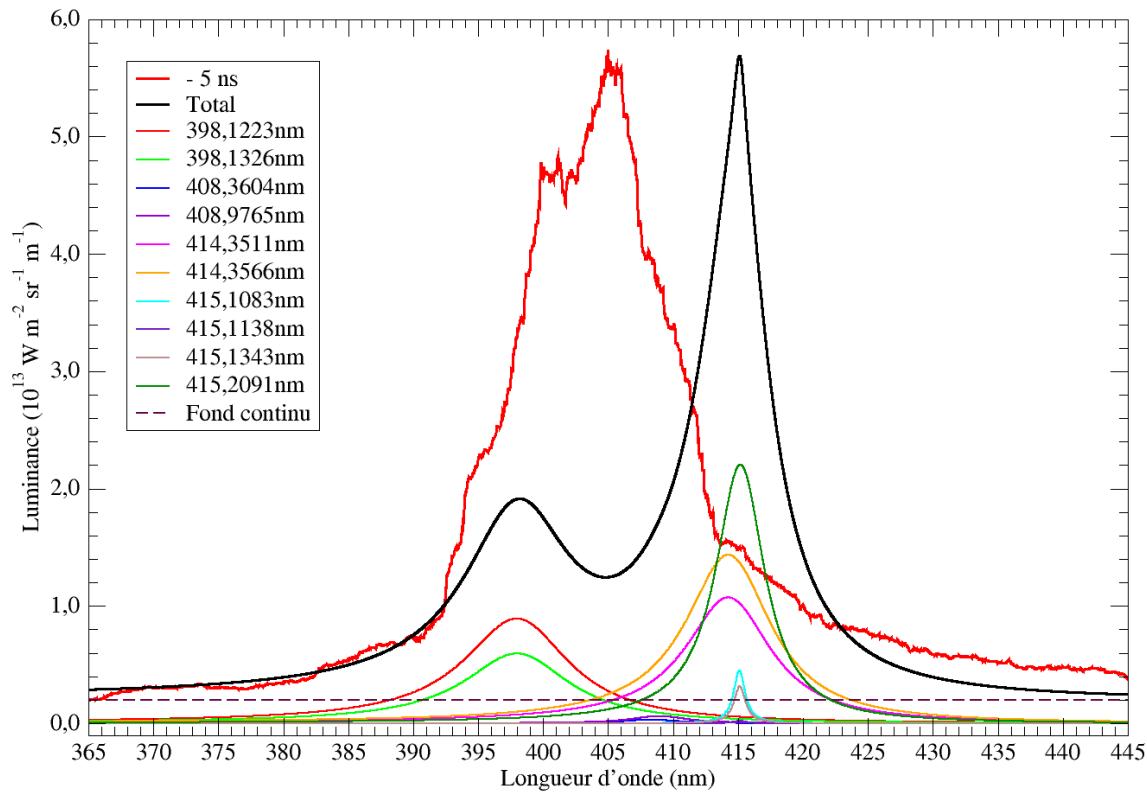


FIGURE 4.1.8 – Groupe de raies sur l'intervalle spectral [395 ; 420] nm observées à l'instant  $t = -5$  ns et comparaison avec le spectre synthétique calculé en supposant un déséquilibre d'excitation entre les niveaux impliqués ( $n_e = 2.10^{24} \text{ m}^{-3}$  et  $T_e = 15500 \text{ K}$ ). Les contributions des différentes raies intervenant dans le spectre (cf. table 4.1.5) définies par l'équation (4.1.9) sont indiquées ainsi que celle du fond continu.

mente celle des autres raies à 415 nm qui ne peuvent pas être suffisamment réduite par l'augmentation des densités de population des états d'énergie 20,55 eV.

A titre d'illustration, la figure 4.1.8 montre l'allure du spectre obtenu en changeant de cette manière les différentes densités de population afin de se rapprocher du spectre expérimental. Ce spectre synthétique a été obtenu dans le cas où la densité de population du niveau supérieur des transitions à 398 nm est égal à  $8.10^{20} \text{ m}^{-3}$  alors que celle du niveau inférieur n'est que de  $2.10^{18} \text{ m}^{-3}$ . Rappelons que ce niveau de densité est également celui des niveaux supérieurs de certaines transitions à 415 nm. Les paramètres électroniques choisis pour calculer le spectre synthétique sont :  $n_e = 2.10^{24} \text{ m}^{-3}$  et  $T_e = 15500 \text{ K}$ .

Les densités précédentes sont le signe d'inversions de population intenses que nous ne nous expliquons pas. Le crédit à porter au spectre synthétique de la gamme [395 ; 420] nm est limité ; en effet, la condition (4.1.19) n'est pas remplie puisque la température électronique adoptée ici est de 15500 K, ce qui dépasse le seuil de 11200 K mis en évidence précédemment concernant la validité de la théorie semi-empirique modifiée développée par Heading *et al.* De plus, le spectre expérimental ne montre aucune diminution de luminance autour de la longueur d'onde à 405 nm : au contraire, c'est à cette longueur d'onde qu'on observe la luminance maximale. Augmenter les élargissements Stark peut permettre de diminuer l'amplitude de ce déficit de luminance à 405 nm. Deux voies sont alors envisageables :

- augmenter la densité électronique : ceci n'est pas une piste intéressante car alors la

densité avoisine les  $10^{25} \text{ m}^{-3}$  mis en évidence pour les instants  $t > 35 \text{ ns}$ , ce qui est par conséquent difficilement compatible avec la phase de création du plasma à laquelle l'instant  $t = -5 \text{ ns}$  se rapporte,

- diminuer la température électronique comme l'indique l'équation (4.1.13) : dans ces conditions,  $T_e$  devient très faible, ce qui est difficilement compatible avec l'évolution ultérieure du plasma où l'excitation est dominée par les collisions inélastiques avec les électrons.

Comme dans le cas de l'étude du spectre sur la gamme [680 ; 710] nm, il est possible qu'une espèce autre que l'aluminium possède des raies dans la gamme étudiée. Nous avons bien sûr pensé au cuivre. Les bases de données indiquent l'émission possible de  $Cu^{2+}$ , cependant sans fournir la probabilité de transition associée. Cette hypothèse ne peut donc être analysée.

La question du spectre sur la gamme [395 ; 420] nm reste donc totalement ouverte.



# Chapitre 4.2

## Étude du fond continu

Excepté des fluctuations d'ordre statistique résultant de l'état de surface de l'échantillon à l'endroit de l'impact ou de l'impulsion elle-même, les expériences montrent que ce fond continu dure environ 50 ns (cf. figure 4.1.1). L'extension spatiale de la zone en question varie au cours du temps et est environ de 150  $\mu\text{m}$ .

En dehors de l'émission de raies étudiées dans le chapitre précédent, l'émission du fond continu est clairement observable. On constate que ce fond continu présente une luminance faible vers  $t = -5$  ns de l'ordre de  $10^{13} \text{ W m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ m}^{-1}$ . Elle croît ensuite très vite pour atteindre  $10^{14}$  à  $10^{15} \text{ W m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ m}^{-1}$  vers  $t = 20$  ns. La diminution observée dans la suite est plus lente puisqu'à  $t = 65$  ns, le fond continu n'a pas encore atteint la luminance qu'il présentait à  $t = -5$  ns. Cette dynamique temporelle est doublée d'une dynamique spectrale. On constate en effet que la luminance correspondant à de faibles longueurs d'onde augmente puis diminue plus vite en relatif que pour des longueurs d'onde supérieures, même si la fin de l'évolution s'avère relativement homogène. Aux temps longs, il est assez difficile de tirer des conclusions définitives en raison de la superposition des raies que nous avons déjà mentionnées.

L'observation de ce fond continu n'est pas nouvelle. Tao *et al.* [221] la mentionnent et montrent en particulier des spectres sur la gamme [600; 635] nm obtenus pour des tirs laser Nd :YAG ( $\lambda_{las} = 1064$  nm,  $\tau = 7$  ns) sur des échantillons d'aluminium à faible pression. Ces spectres sont observés sur une distance de l'ordre de 200  $\mu\text{m}$  au dessus de la cible, c'est-à-dire sur une distance caractéristique très voisine de la nôtre. De plus, les auteurs affirment que ce fond continu résulte des transitions libre-lié par recombinaison radiative et des transitions libre-libre par Bremsstrahlung.

Dans d'autres conditions, Heading *et al.* [99] ont observé un fond continu ayant de fortes similitudes. Même si ces conditions sont différentes des nôtres, il est intéressant de s'attarder sur leurs résultats : ce qui va nous permettre de faire un certain nombre de conclusions. Les expériences de Heading *et al.* sont menées sur des cibles planes en aluminium en contact avec une fenêtre arrière de quartz. A 250  $\mu\text{m}$  de celle-ci est placée une seconde fenêtre de quartz du côté du rayonnement laser incident. Cette disposition permet d'éclairer la cible et de confiner le plasma produit suite à l'irradiation. Les impulsions laser utilisées ont une durée à mi-hauteur  $\tau = 4,5$  ns et une longueur d'onde  $\lambda_{las} = 1,05 \mu\text{m}$ <sup>1</sup>. Le diamètre du faisceau est choisi afin de limiter la densité de flux à  $10^{13} \text{ W m}^{-2}$ . Même si cette disposition en "sandwich" confine le plasma formé, ses caractéristiques en début d'expansion sont assez voisines de celles relatives à notre propre

---

1. Ces impulsions sont générées par le laser Vulcan du Laboratoire National de Lawrence Livermore (LLNL).

configuration. Les résultats issus des travaux de Heading *et al.* sont reportés sur la figure 4.2.1. Les spectres en rapport correspondent hélas à des temps caractéristiques trop grands pour qu'une comparaison directe avec nos résultats soit possible. En effet, le plasma a atteint la seconde fenêtre en quartz aux instants 60 ns et 130 ns après l'impulsion et se trouve totalement confiné : la pression, la densité et la température électroniques y sont très élevées. Néanmoins, nous pouvons constater que les spectres sont assez voisins des nôtres. Même si l'unité utilisée pour la luminance n'est pas précisée, les auteurs indiquent qu'une calibration par lampe à ruban de tungstène a été réalisée : les luminances peuvent donc être comparées d'une longueur d'onde à l'autre.

Les spectres (a) et (b) de la figure 4.2.1 présentent une certaine similitude avec ceux illustrés par la figure 4.1.1. La gamme spectrale présentant la luminance la plus forte est comprise entre 400 et 450 nm. Pour une longueur d'onde comprise entre 450 et 520 nm, la luminance décroît. Au-dessus de 620 nm, la luminance augmente de nouveau pour diminuer à partir de 650 nm. Comme on peut le constater, les élargissements de raies sont très importants. Ils résultent de l'effet Stark provoqué par les niveaux élevés de densité électronique du plasma. Ce type d'élargissement est responsable d'une très large dispersion spectrale s'étendant très loin de part et d'autre de la longueur d'onde centrale de la raie, comme nous l'avons déjà signalé en page 147. Grâce à cette propriété, les auteurs reconstituent le spectre avec un certain succès sur la gamme observée sans faire appel à d'autres processus radiatifs. Notons que c'est dans le cadre de cette étude qu'ils ont développé l'approche semi-empirique modifiée des élargissements Stark [100] que nous avons utilisée dans la section 4.1.3. A titre d'illustration, les figures 4.2.1(a) et 4.2.1(b) montrent le bon accord entre les spectres expérimentaux et ceux calculés en prenant uniquement en compte l'effet Stark.

Heading *et al.* précisent que les élargissements à mi-hauteur peuvent atteindre 30 nm. On constate sur le spectre de la figure 4.1.1 que les élargissements de raies obtenus dans nos conditions expérimentales sont inférieurs : la densité électronique en rapport est donc inférieure à celles obtenues par Heading *et al.* Ceux-ci estiment la densité électronique au maximum égale à  $3 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-3}$  : la densité électronique de notre plasma est donc inférieure à cette valeur.

L'influence de la température électronique sur les spectres calculés par Heading *et al.* est modérée. La figure 4.2.1(b) montre les changements apportés au spectre lorsque la température électronique passe de 2 à 3 eV. La répartition spectrale du rayonnement est modifiée sans que l'ordre de grandeur de la luminance calculée change. On peut donc conclure que l'ordre de grandeur de la luminance mesurée est piloté par la densité électronique alors que la forme du spectre résulte plutôt du niveau de température électronique.

Les travaux de Heading *et al.* qui viennent d'être rappelés concernent un plasma d'aluminium confiné observé longtemps après l'impulsion laser : les spectres sont en effet acquis 60 et 130 ns après l'impulsion. Nos propres spectres sont acquis plus tôt : le plus tardif correspond à l'instant  $t = 65$  ns après l'impulsion. On y voit très clairement les raies de Al II et Al III émerger du reste du spectre. Pendant les premiers instants, on ne distingue aucune raie apparaître hormis celles à 415 nm et 625 nm correspondant à des désexcitations de Al II et Al III. En particulier l'intervalle spectral [680 ; 800] nm ne contient aucune raie observable jusqu'à l'instant  $t \approx 20$  ns. La question est donc la suivante :

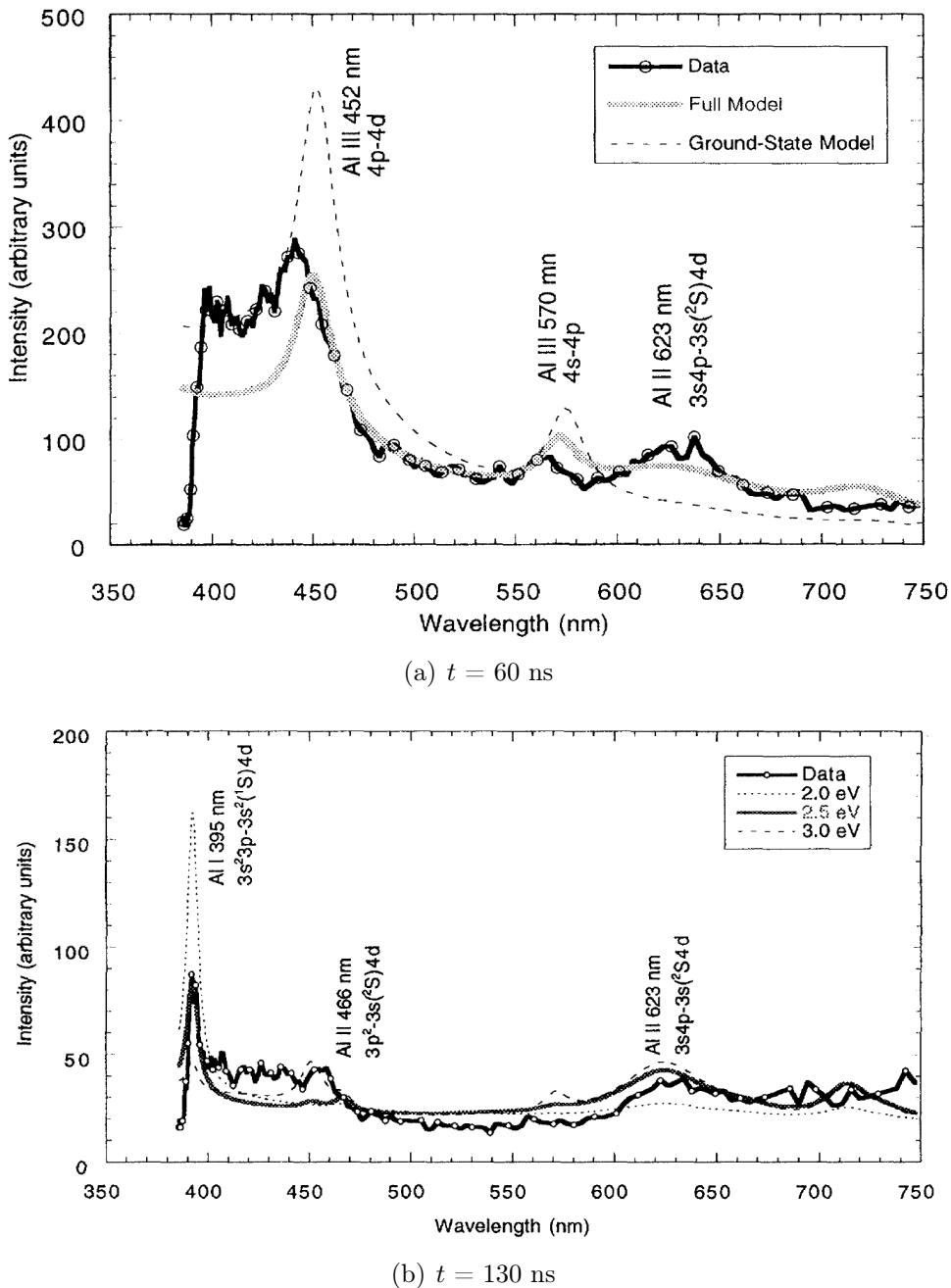


FIGURE 4.2.1 – Spectres obtenus par Heading *et al.* [99] aux instants (a)  $t = 60 \text{ ns}$  et (b)  $130 \text{ ns}$  après l’impulsion laser ( $\lambda_{\text{las}} = 1,05 \mu\text{m}$ ,  $\tau = 4,5 \text{ ns}$ ,  $\varphi_{\text{las}} = 10^{13} \text{ W m}^{-2}$ ) sur une cible d’aluminium prise en "sandwich" (espace libre de  $250 \mu\text{m}$ ). Les modèles mis en œuvre font uniquement intervenir les élargissements Stark des raies émises résultant des fortes densités électroniques.

*le rayonnement observé aux temps courts sur l'intervalle [680 ; 800] nm peut-il être interprété comme la superposition de raies très élargies par effet Stark comme Heading et al. le font aux temps longs pour leur propre plasma, ou bien n'y a-t-il vraiment aucune raie et dans ce cas ce rayonnement forme-t-il un continuum résultant d'un autre phénomène physique ?*

Tao *et al.* interprètent le continuum observé comme résultant de la recombinaison radiative et du Bremsstrahlung. Dans la suite, nous allons analyser de près ces deux hypothèses.

### 4.2.1 Bremsstrahlung

Nous avons déjà décrit ce phénomène physique dans la sous-section 2.1.4.d. Pour permettre un calcul du spectre selon une approche identique à celle développée dans la section 4.1.2, nous avons repris les développements de Tucker et Gould [230] déjà cités. Les interactions électron-électron étant négligeables en régime non relativiste comme c'est le cas ici en raison des faibles niveaux de température, seul le Bremsstrahlung électron-ion est considéré. Ce processus conduit à la puissance rayonnée par unité de volume, d'angle solide et d'intervalle spectral (exprimée en  $\text{W m}^{-3} \text{ sr}^{-1} \text{ m}^{-1}$ ) sous la forme :

$$p_{BT}(\lambda, T_e, n_e) = \frac{32}{3\sqrt{3}} \frac{1}{\bar{v}_e} \frac{1}{m_e^2 c^2} \frac{e^6}{(4\pi\epsilon_0)^3} \frac{e^{-hc/(\lambda k_B T_e)}}{\lambda^2} n_e G_\lambda(T_e) Z^2 [\text{Al}^{Z+}] \quad (4.2.1)$$

dans l'hypothèse où les électrons sont maxwelliens et où l'ion majoritaire est  $\text{Al}^{Z+}$ . Les termes apparaissant dans l'équation (4.2.1) sont semblables à ceux vus dans la sous-section 2.1.4.d. Ici,  $G_\lambda(T_e)$  est un facteur de Gaunt spectral. Notons au passage que l'expression (4.2.1) multipliée par  $4\pi$  et intégrée sur tout le spectre permet d'accéder à la puissance totale rayonnée par le plasma par Bremsstrahlung dans tout l'espace et d'en déduire l'expression 2.1.51 établie à la page 62.

L'expression (4.2.1) permet de déduire l'augmentation de luminance observée dans une direction donnée :

$$dL(\lambda, x) = p_{BT}(\lambda, T_e, n_e) dx \quad (4.2.2)$$

au passage d'une tranche d'épaisseur  $dx$ .

Introduisant la luminance du corps noir :

$$L^0(\lambda, T_e) = \frac{2 h c^2}{\lambda^5} \frac{1}{e^{hc/(\lambda k_B T_e)} - 1} \quad (4.2.3)$$

on en déduit :

$$dL(\lambda, x) = \frac{p_{BT}(\lambda, T_e, n_e)}{L^0(\lambda, T_e)} L^0(\lambda, T_e) dx \quad (4.2.4)$$

A partir de cette équation, nous déduisons l'expression du coefficient d'émission par unité de longueur :

$$k_{BT}(\lambda, T_e, n_e) = \frac{p_{BT}(\lambda, T_e, n_e)}{L^0(\lambda, T_e)} \quad (4.2.5)$$

qui peut également être écrit sous la forme :

$$k_{BT}(\lambda, T_e, n_e) = \left(1 - e^{-hc/(\lambda k_B T_e)}\right) \lambda^3 \frac{16}{3\sqrt{3}} \frac{1}{\bar{v}_e} \frac{1}{m_e^2 h c^4} \frac{e^6}{(4\pi\epsilon_0)^3} n_e G_\lambda(T_e) Z^2 [Al^{Z+}] \quad (4.2.6)$$

Nous mettons ainsi en évidence l'influence de l'émission stimulée sur le coefficient d'émission par unité de longueur par le terme  $e^{-hc/(\lambda k_B T_e)}$  que nous avons déjà mentionné à propos du Bremsstrahlung inverse dans la sous-section 2.1.4.c. Reprenant l'équation de transfert radiatif (4.1.6), il est alors possible d'en déduire après intégration l'équation équivalente à l'équation (4.1.9) dans le cas du Bremsstrahlung :

$$L_{BT}(\lambda, T_e, n_e, X) = L^0(\lambda, T_e) \left(1 - e^{-k_{BT}(\lambda, T_e, n_e)X}\right) \quad (4.2.7)$$

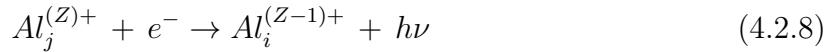
en supposant le plasma homogène.

Le facteur de Gaunt spectral de l'expression (4.2.1) dépend des facteurs adimensionnels  $\gamma^2 = Z^2 E_H/(k_B T_e)$  et  $u = hc/(\lambda k_B T_e)$  selon une fonction complexe tabulée avec précision par Sutherland [220] et dont les résultats ont été repris ici.

Le calcul du spectre sur la gamme [400 ; 850] nm réalisé avec les données précédentes dans les conditions de la table 4.1.4 montre que la luminance obtenue est largement inférieure à celle mesurée. Nous avons donc également développé le calcul du spectre de recombinaison radiative.

## 4.2.2 Recombinaison radiative

La recombinaison radiative résulte du processus élémentaire suivant :



où  $j = 1$ , le niveau le plus peuplé étant le fondamental. Le processus précédent se produit conformément à la conservation de l'énergie :

$$E_i^{(Z-1)+} = E_{1,eff}^{(Z)+} + \frac{1}{2} m_e v_e^2 - h\nu \quad (4.2.9)$$

où  $E_{1,eff}^{(Z)+}$  est l'énergie effective de l'ion  $Al^{(Z)+}$  compte tenu de son interaction avec les autres charges du plasma à sa proximité : l'ion  $Al^{(Z)+}$  peut être en effet soumis à un abaissement de son potentiel d'ionisation éventuellement important du fait des valeurs de la densité et de la température électroniques mises en évidence dans les paragraphes précédents. Ainsi, les niveaux excités de l'ion  $Al^{(Z-1)+}$  concernés par la recombinaison respectent l'inégalité :

$$E_i^{(Z-1)+} > E_{1,eff}^{(Z)+} - h\nu \quad (4.2.10)$$

Nous noterons  $i_{min}$  le numéro du premier niveau concerné par l'inégalité précédente. Sachant que :

$$E_{1,eff}^{(Z)+} = E_1^{(Z)+} - \Delta E_1^{(Z)+} \quad (4.2.11)$$

où  $\Delta E_1^{(Z)+}$  est l'abaissement du potentiel d'ionisation, on en déduit :

$$E_i^{(Z-1)+} > E_1^{(Z)+} - \Delta E_1^{(Z)+} - h\nu \quad (4.2.12)$$

Dans la suite, l'expression de l'abaissement du potentiel d'ionisation utilisée est celle proposée par Griem [88] :

$$\Delta E_1^{(Z)+} = \frac{Z e^3}{4 \pi \epsilon_0} \sqrt{\frac{(Z+1) n_e}{\epsilon_0 k_B T_e}} \quad (4.2.13)$$

en supposant l'ion de charge  $Z+$  majoritaire.

Le spectre est calculé sur la gamme spectrale [400 ; 850] nm : les niveaux concernés par la recombinaison radiative sur cette gamme sont donc situés au plus bas à environ 3 eV de la limite d'ionisation corrigée de l'abaissement donné par Griem. Nous avons développé le calcul du spectre pour deux ions :  $\text{Al}^+$  et  $\text{Al}^{2+}$ . Dans le cas de  $\text{Al}^+$ , la quasi-totalité des niveaux excités de Al intervient dans le calcul du spectre, l'énergie d'ionisation valant 5,99 eV, le premier état excité ayant une énergie de 0,014 eV et le deuxième état excité ayant une énergie de 3,14 eV. Dans les conditions de la table 4.1.4, l'abaissement de potentiel d'ionisation peut atteindre 0,9 eV pour Al et 2,2 eV pour  $\text{Al}^+$ . Dans ces conditions, nous avons autant que possible renoncé à l'hypothèse hydrogénoides afin que le spectre puisse être directement comparé avec l'expérience.

Sans tenir compte de l'abaissement du potentiel d'ionisation, la puissance rayonnée par unité de volume, par unité d'intervalle spectral et par unité d'angle solide s'écrit de manière semblable à celle du Bremsstrahlung [28] :

$$p_{RR}(\lambda, T_e, n_e) = \frac{32}{3\sqrt{3}} \frac{1}{\bar{v}_e} \frac{1}{m_e^2 c^2} \frac{e^6}{(4\pi\epsilon_0)^3} \frac{e^{-hc/(\lambda k_B T_e)}}{\lambda^2} n_e f_\lambda(T_e) Z^2 [\text{Al}_1^{Z+}] \quad (4.2.14)$$

à la différence que le facteur de Gaunt spectral  $G_\lambda(T_e)$  est remplacé par un facteur  $f_\lambda(T_e)$  qui n'est pas un facteur de Gaunt.

La forme (4.2.14) est obtenue en analysant le processus inverse à (4.2.8), qui n'est autre que la photo-ionisation du niveau excité  $i$  de l'ion  $\text{Al}^{(Z-1)+}$ , et en sommant sur tous les niveaux  $i$  obéissant à la condition (4.2.12). La section efficace de photo-ionisation des états excités de Al et  $\text{Al}^+$  n'a pas pu être trouvée dans la littérature en dépit de recherches poussées. La section efficace obtenue par un modèle hydrogénoides a donc été utilisée. Elle dépend de  $n_i^{-5}$  où  $n_i$  est le nombre quantique principal effectif du niveau  $i$  défini par l'équation (4.1.16). Le facteur  $f_\lambda(T_e)$  vaut alors [28] :

$$f_\lambda(T_e) = \sum_{i_{min}}^{\infty} 2 \theta(T_e) \frac{e^{\theta(T_e)/n_i^2}}{n_i^3} G_{n_i}(\lambda) \quad (4.2.15)$$

où :

$$\theta(T_e) = \frac{Z^2 E_H}{k_B T_e} \quad (4.2.16)$$

et où  $G_{n_i}(\lambda)$  est un autre facteur de Gaunt spectral, différent de celui intervenant dans le cas du spectre de Bremsstrahlung.

Nous avons modifié les équations précédentes pour réduire l'ampleur de l'hypothèse hydrogénoides et intégrer l'influence de l'abaissement du potentiel d'ionisation. Le calcul du facteur  $f_\lambda(T_e)$  revient au calcul suivant :

$$f_\lambda(T_e) = \sum_{i_{min}}^{\infty} \theta(T_e) g_i \frac{e^{\theta(T_e)/n_i^2}}{n_i^5} G_{n_i}(\lambda) \quad (4.2.17)$$

où

$$g_i = 2 n_i^2 \quad (4.2.18)$$

est le poids statistique du niveau de nombre quantique principal effectif  $n_i$ . On remarque ainsi l'intervention de  $n_i^5$  dont dépend la section efficace de photo-ionisation dans l'hypothèse hydrogénoidée. Le facteur  $f_\lambda(T_e)$  peut donc être calculé par :

$$f_\lambda(T_e) = \sum_{i_{min}}^{i_{max}} \theta(T_e) g_i \frac{e^{\theta(T_e)/n_i^2}}{n_i^5} G_{n_i}(\lambda) \quad (4.2.19)$$

où  $i_{max}$  est le numéro du dernier niveau lié du fait de l'abaissement du potentiel d'ionisation.

Les équations (4.1.16) et (4.2.16) permettent d'en déduire :

$$\frac{\theta(T_e)}{n_i^2} = \frac{E_1^{(Z)+} - E_i^{(Z-1)+}}{k_B T_e} \quad (4.2.20)$$

L'abaissement du potentiel d'ionisation change le nombre quantique principal effectif. L'équation précédente est ainsi modifiée :

$$\frac{\theta(T_e)}{n_i^2} = \frac{E_1^{(Z)+} - \Delta E_1^{(Z)+} - E_i^{(Z-1)+}}{k_B T_e} \quad (4.2.21)$$

Le facteur  $f_\lambda(T_e)$  maintenant fonction de  $n_e$  est alors calculé par l'équation :

$$f_\lambda(T_e, n_e) = \frac{1}{Z^3 k_B T_e E_H^{3/2}} \sum_{i_{min}}^{i_{max}} g_i \left[ E_1^{(Z)+} - \Delta E_1^{(Z)+} - E_i^{(Z-1)+} \right]^{5/2} e^{\frac{E_1^{(Z)+} - \Delta E_1^{(Z)+} - E_i^{(Z-1)+}}{k_B T_e}} \quad (4.2.22)$$

en supposant les facteurs de Gaunt spectraux  $G_{n_i}(\lambda)$  égaux à 1 [159].

Les données du NIST sont directement utilisées pour le calcul du facteur  $f_\lambda(T_e)$  sans qu'aucune procédure de regroupement de niveaux ne soit adoptée afin de rendre le spectre le plus réaliste. Ce dernier est déterminé de la même manière que celui dû au Bremsstrahlung en utilisant les équations (4.2.4), (4.2.5) et (4.2.7) où l'indice  $BT$  est remplacé par l'indice  $RR$ . La luminance totale résultant du Bremsstrahlung et de la recombinaison radiative est en définitive calculée par :

$$L(\lambda, T_e, n_e, X) = L^0(\lambda, T_e) \{1 - e^{-[k_{BT}(\lambda, T_e, n_e) + k_{RR}(\lambda, T_e, n_e)]X}\} \quad (4.2.23)$$

## 4.2.3 Continuum Bremsstrahlung et recombinaison radiative

La dépendance du spectre ainsi obtenu est faible vis-à-vis de  $T_e$ . En revanche, celle vis-à-vis de  $n_e$  est nettement plus importante. De plus, la contribution de la part des ions  $\text{Al}^{2+}$  est plus faible aux grandes longueurs d'onde que celle des ions  $\text{Al}^+$ . Pour l'illustrer, la figure 4.2.2 présente le spectre calculé en supposant que l'ion majoritaire est  $\text{Al}^+$  [figure 4.2.2(a)] ou  $\text{Al}^{2+}$  [figure 4.2.2(b)]. On constate en effet que la luminance du continuum est plus grande avec  $\text{Al}^+$  qu'avec  $\text{Al}^{2+}$  pour  $\lambda > 650$  nm. Cette figure montre également la

contribution du Bremsstrahlung et celle de la recombinaison radiative : le Bremsstrahlung présente une luminance toujours plus faible que celle de la recombinaison radiative, ce qui justifie la mise en œuvre du calcul du spectre de recombinaison radiative.

Les conditions choisies pour le calcul des spectres des figures 4.2.2(a) et 4.2.2(b) sont très proches de celles déterminées précédemment à la suite de l'étude des raies de la gamme spectrale [680 ; 710] nm. Il est plutôt satisfaisant de constater que les luminances obtenues sont très proches de la luminance expérimentale. Plus précisément, ces conditions sont celles déterminées pour l'instant  $t = 35$  ns. La luminance du fond continu a été estimée égale à  $9.10^{13} \text{ W m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ m}^{-1}$  lors de l'étude des raies spécifiques. La luminance calculée en supposant l'ion  $\text{Al}^+$  majoritaire est de  $7.2.10^{13} \text{ W m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ m}^{-1}$  alors que celle obtenue en supposant l'ion  $\text{Al}^{2+}$  majoritaire est de  $4.4.10^{13} \text{ W m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ m}^{-1}$ . Il semble donc que l'ion responsable du continuum soit plutôt  $\text{Al}^+$ . Cette conclusion est renforcée par le comportement de la discontinuité que présente le spectre synthétique vers  $\lambda = 770$  nm dans les deux cas et qu'on ne retrouve nullement sur le spectre expérimental. Cette discontinuité résulte de la condition (4.2.12) qui modifie d'une longueur d'onde à l'autre les niveaux impliqués dans la recombinaison radiative. En raison de l'intervention de l'abaissement du potentiel d'ionisation, cette discontinuité est observée à une longueur d'onde variable avec les paramètres électroniques. En particulier, l'augmentation de la densité électronique déplace cette discontinuité vers les grandes longueurs d'onde. A titre d'illustration, la figure 4.2.3 montre les modifications apportées au spectre lorsque la densité électronique passe successivement de  $1.1.10^{25} \text{ m}^{-3}$ , à  $1.3.10^{25} \text{ m}^{-3}$  puis à  $1.55.10^{25} \text{ m}^{-3}$ . La discontinuité observée sur le spectre dû à  $\text{Al}^{2+}$  se comporte de la même manière, mais il faut alors davantage augmenter la densité électronique pour faire passer la discontinuité au delà de 850 nm et les niveaux de luminance obtenus restent inférieurs à ceux obtenus en supposant l'ion  $\text{Al}^+$  majoritaire. Nous en concluons donc que l'ion  $\text{Al}^+$  peut être considéré comme majoritaire.

Nous constatons que le spectre synthétique est alors très proche du spectre expérimental correspondant à l'instant  $t = 35$  ns. Dès lors, la luminance calculée est égale à  $1.0.10^{14} \text{ W m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ m}^{-1}$ , ce qui est remarquablement proche de la luminance du fond continu estimée par l'étude du groupe de raies de la gamme spectrale [680 ; 710] nm. L'accord semble en revanche moins bon à des longueurs d'onde voisines de 800 nm. Néanmoins, le spectre de la figure 4.2.3 est présenté en échelle semi-logarithmique : autour de 800 nm, la luminance expérimentale est voisine de  $1.2.10^{14} \text{ W m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ m}^{-1}$  et celle calculée est de  $8.10^{13} \text{ W m}^{-2} \text{ sr}^{-1} \text{ m}^{-1}$ . La grande différence entre ces deux valeurs, montre malgré tout que l'ordre de grandeur obtenu pour la densité électronique est le bon.

Pour des longueurs d'onde inférieures à 480 nm, le fond continu calculé correspond à des luminances inférieures à celles obtenues lors des expériences. Rien n'empêche à la luminance expérimentale d'être supérieure en raison de la superposition des raies de Al III et de leur élargissement résultant du niveau élevé de densité électronique. Entre 480 nm et 515 nm, la luminance expérimentale est inférieure à celle obtenue pour le continuum : cette différence peut résulter des incertitudes de mesure ainsi que de celles relatives aux données de base et les hypothèses utilisées pour le calcul du spectre synthétique.

Ainsi pour l'instant  $t = 35$  ns, les gammes spectrales se prêtant le moins à une comparaison satisfaisante entre le spectre synthétique et l'expérience sont [480 ; 515] nm et [800 ; 850] nm. Néanmoins, les spectres en question sont proches les uns des autres et compatibles dans le cadre des incertitudes. En dehors de ces plages et de celle correspondant à la fenêtre d'inobservabilité due à la raie laser et à l'utilisation du filtre passe-haut, les spectres présentent un degré de cohérence suffisant dans les zones éloignées de toutes raies

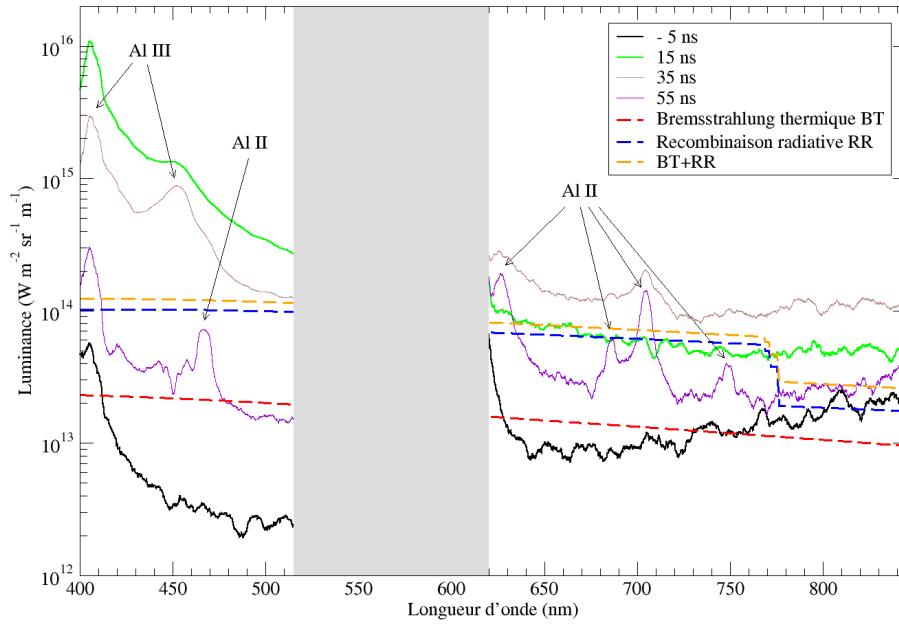
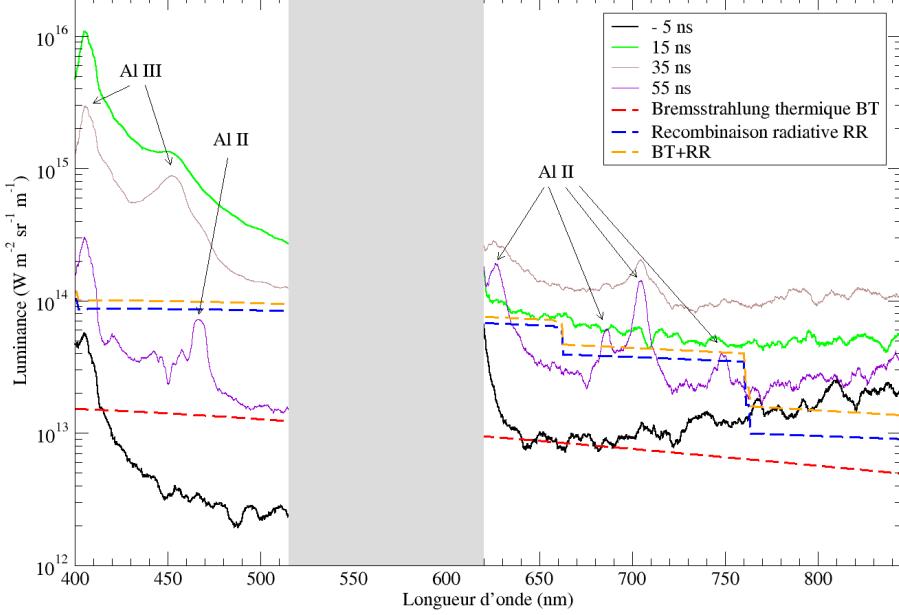
(a) Ions majoritaires  $\text{Al}^+$ (b) Ions majoritaires  $\text{Al}^{2+}$ 

FIGURE 4.2.2 – Continuum intégrant le Bremsstrahlung et la recombinaison radiative calculé en supposant (a) les ions  $\text{Al}^+$  majoritaires ou (b) les ions  $\text{Al}^{2+}$  majoritaires dans les mêmes conditions de température ( $T_e = 16000 \text{ K}$ ) et de densité ( $n_e = 1,1 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-3}$ ) électroniques. L'épaisseur  $X$  du plasma est supposée égale à  $300 \mu\text{m}$  comme dans le cas des résultats de la table 4.1.4.

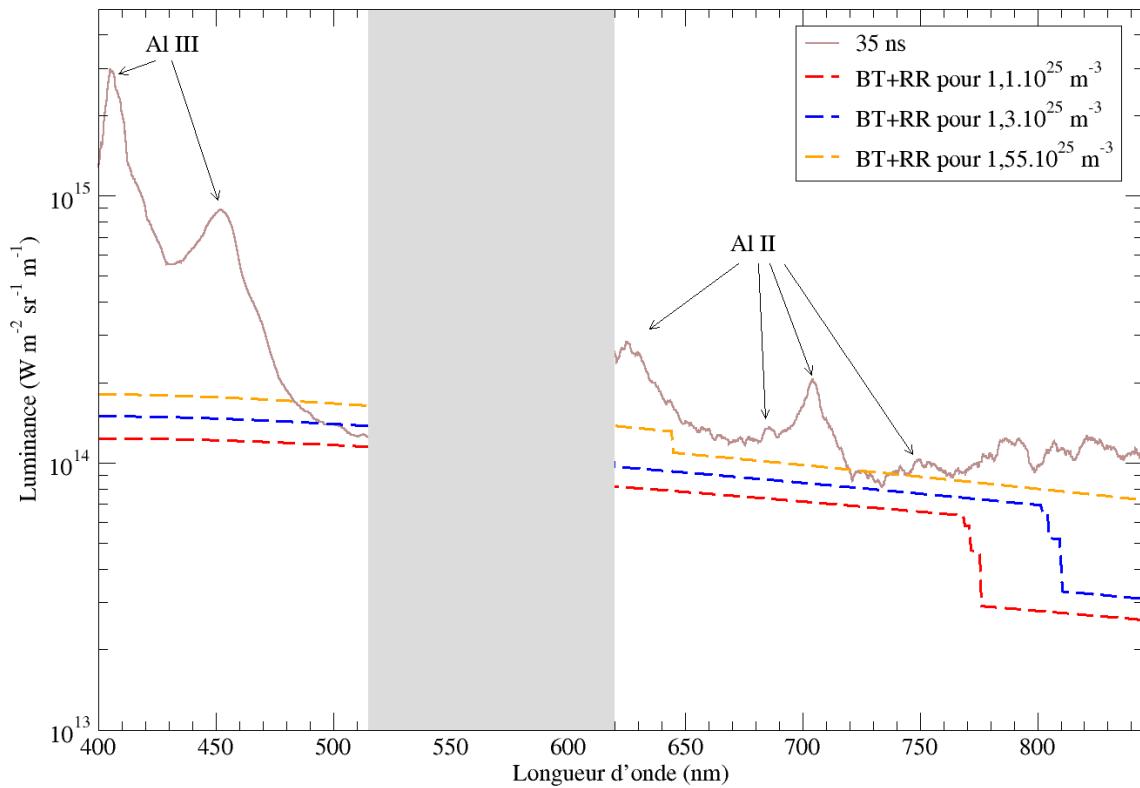


FIGURE 4.2.3 – Évolution du continuum en fonction de la densité électronique en supposant l’ion  $\text{Al}^+$  majoritaire et comparaison avec le spectre expérimental à l’instant  $t = 35 \text{ ns}$ .

pour conclure qu’à cet instant la densité électronique estimée par l’étude du continuum est voisine de  $1,55 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-3}$ .

Nous avons supposé dans la suite qu’en raison des résultats mis en évidence pour l’instant  $t = 35 \text{ ns}$ , les ions  $\text{Al}^+$  sont toujours majoritaires. Nous avons multiplié les calculs du spectre synthétique et leur comparaison au spectre expérimental pour déduire l’évolution temporelle des paramètres électroniques. Ces calculs systématiques se sont heurtés aux discontinuités dans le spectre que nous avons évoquées antérieurement à propos de la recombinaison radiative et qui n’apparaissent pas dans le spectre expérimental : les paramètres électroniques doivent donc être judicieusement ajustés. D’autre part, le spectre expérimental présente un comportement particulier pour les longueurs d’onde inférieures à  $515 \text{ nm}$  qu’il est assez difficile de corrélérer aux calculs du continuum, notamment aux temps courts. Par ailleurs, pour toutes les gammes temporelles étudiées, la luminance du fond continu est assez faible et se prête de ce fait assez mal à une comparaison avec les spectres théoriques. Enfin, aux temps courts, les raies très élargies de  $\text{Al}^{2+}$  de longueur d’onde inférieure à  $550 \text{ nm}$  empêchent la comparaison avec les spectres calculés. Cette situation particulière est également observée aux temps longs pour les raies de  $\text{Al}^+$  au delà de  $620 \text{ nm}$ . Tout ceci explique pourquoi les paramètres électroniques n’ont pu être déterminés qu’aux instants  $t$  tels que  $15 \text{ ns} < t < 45 \text{ ns}$ . Les résultats obtenus pour une épaisseur  $X = 300 \mu\text{m}$  sont présentés dans la table 4.2.1 où sont également rappelés ceux résultant de l’étude du groupe de raies de la gamme spectrale [680 ; 710] nm (table 4.1.4).

La confrontation de ces résultats permet de conclure que les densités électroniques déduites de l’étude de raies particulières et du continuum sont très proches les unes des autres : le rapport le plus grand obtenu est de 2,6. Les valeurs déterminées pour la lu-

$t$ (ns)	$n_e$ (m $^{-3}$ )	$T_e$ (K)	$L^{fc}$ à 690 nm (W m $^{-2}$ sr $^{-1}$ m $^{-1}$ )	$n_e^*$ (m $^{-3}$ )	$T_e^*$ (K)	$L^{fc*}$ à 690 nm (W m $^{-2}$ sr $^{-1}$ m $^{-1}$ )
15	$1,2 \cdot 10^{25}$	10000	$5,6 \cdot 10^{13}$			
25	$2,9 \cdot 10^{25}$	13300	$1,4 \cdot 10^{14}$	$1,1 \cdot 10^{25}$	15200	$1,25 \cdot 10^{14}$
35	$1,55 \cdot 10^{25}$	16000	$1,0 \cdot 10^{14}$	$1,1 \cdot 10^{25}$	16000	$9,0 \cdot 10^{13}$
45	$1,2 \cdot 10^{25}$	10000	$5,6 \cdot 10^{13}$	$1,25 \cdot 10^{25}$	16200	$4,0 \cdot 10^{13}$
55				$1,1 \cdot 10^{25}$	15400	$1,7 \cdot 10^{13}$
65				$1,05 \cdot 10^{25}$	14700	$1,2 \cdot 10^{13}$

TABLE 4.2.1 – Évolution temporelle des caractéristiques électroniques du plasma obtenues par confrontation entre le spectre expérimental et le spectre synthétique du continuum prenant en compte Bremsstrahlung et recombinaison radiative. Comparaison avec les résultats (rappelés par des astérisques) obtenus lors de l'étude du groupe de raies de la gamme spectrale [680 ; 710] nm (table 4.1.4). L'ensemble des calculs considèrent une épaisseur  $X = X^* = 300 \mu\text{m}$ .

minance du fond continu présentent également un degré de cohérence satisfaisant : la différence entre ces valeurs est au maximum de 40 % au pire. Enfin, les températures électroniques présentent un désaccord important qu'il faut relativiser :  $T_e$  est en effet le paramètre auquel le calcul du continuum est le moins sensible. Il est donc logique de privilégier les estimations de la température électronique faites lors de l'étude des raies de la gamme spectrale [680 ; 710] nm réalisée à la section 4.1.2. Rappelons d'ailleurs que le niveau de luminance de ce groupe de raies est essentiellement piloté par la température électronique, ce qui a permis d'avoir une bonne estimation de  $T_e$ .

#### 4.2.4 Superposition de raies élargies par effet Stark

Nous avons abordé en préambule de ce chapitre les travaux de Heading *et al.* consacrés à un plasma confiné d'aluminium et leur interprétation de l'observation d'un fond continu : selon ces auteurs, ce continuum résulte de l'élargissement des raies atomiques et ioniques par effet Stark. Les calculs réalisés précédemment concernant le Bremsstrahlung et la recombinaison radiative permettent désormais de discuter cette interprétation dans le cas de notre plasma.

Les spectres synthétiques calculés dans la section précédente permettent de retrouver de manière très convaincante les spectres expérimentaux : les valeurs attribuées à la densité électronique sont en très bon accord, alors que celles relatives à la température électronique le sont moins. Nous avons nuancé l'importance de ce désaccord en insistant sur le manque de sensibilité du spectre synthétique aux variations de  $T_e$ . Une analyse attentive du spectre expérimental montre que la gamme se prêtant le moins à une interpolation avec un spectre synthétique correspond à l'intervalle [400 ; 520] nm. C'est justement sur cet intervalle spectral que les spectres calculés par Heading *et al.* présentent une luminance très élevée, susceptible par conséquent d'être interprétée comme le résultat d'élargissements Stark importants. Dans la gamme spectrale [600 ; 850] nm, la luminance calculée par ces auteurs est plus faible et cet intervalle se prête davantage à une comparaison aux spectres calculés en prenant en compte Bremsstrahlung et recombinaison radiative.

En définitive :

- **sur la gamme [400 ; 520] nm**, les différences importantes observées entre les spectres synthétiques et expérimentaux résultent de l'influence importante de raies

$t$ (ns)	$n_{e,mod}$ ( $m^{-3}$ )	$T_{e,mod}$ (K)	$\text{Ion}_{mod}$	$n_{e,exp}$ ( $m^{-3}$ )	$T_{e,exp}$ (K)	$\text{Ion}_{exp}$
25	$3,0 \cdot 10^{24}$	$\approx 7000$	$\text{Al}^+$	$1,1\text{-}2,9 \cdot 10^{25}$	15000-16000	$\text{Al}^+$
35	$3,5 \cdot 10^{24}$	$\approx 7000$	$\text{Al}^+$	$1,1\text{-}2,9 \cdot 10^{25}$	15000-16000	$\text{Al}^+$
45	$4,0 \cdot 10^{24}$	$\approx 7000$	$\text{Al}^+$	$1,1\text{-}2,9 \cdot 10^{25}$	15000-16000	$\text{Al}^+$

TABLE 4.2.2 – Comparaison entre les résultats obtenus par le modèle A (indicés par *mod*) et les résultats expérimentaux (indicés par *exp*).

élargies par effet Stark : il serait donc intéressant de développer un calcul spécifique du profil de ces raies avec d'autres méthodes que celle développée dans la section 4.1.3 qui n'a manifestement pas fait ses preuves, d'y superposer les contributions dues au Bremsstrahlung et à la recombinaison radiative et de comparer les spectres obtenus avec l'expérience,

- sur la gamme [600 ; 850] nm, les données de Griem ont montré leur performance dans le calcul des élargissements Stark et le calcul du continuum est bien corrélé au spectre expérimental : on peut donc privilégier la détermination des paramètres électroniques issues de leur utilisation. Plus précisément, la densité électronique issue des études du profil des raies et du continuum peuvent être conservées alors que seules les valeurs de la température électronique issues de l'étude du profil des raies doivent être retenues.

Ainsi, l'étude du spectre nous permet de conclure que la densité électronique varie peu entre les instants  $t_1 = 25$  ns et  $t_2 = 45$  ns selon l'intervalle :

$$1,1 \cdot 10^{25} m^{-3} < n_e < 2,9 \cdot 10^{25} m^{-3} \quad (4.2.24)$$

et la température électronique est telle que :

$$15000 K < T_e < 16000 K \quad (4.2.25)$$

## 4.2.5 Comparaison avec les résultats des modèles

Même si les déterminations précédentes manquent de précision et ne correspondent pas aux instants pour lesquels nous souhaiterions obtenir des résultats (c'est-à-dire autour du maximum de l'impulsion laser), elles permettent néanmoins une comparaison avec les résultats du code A mis au point au chapitre 2.1 et dont les résultats ont été discutés au chapitre 3.1. Les différentes conditions étudiées dans la section 3.1.2 permettent d'identifier celles menant aux propriétés du plasma les plus proches de celles mises en évidence expérimentalement. Lorsque la température de surface maximale atteint la température critique ( $T_s^{max} = 6700$  K), la température électronique reste voisine de 7000 K (cf. figure 3.1.18 de la page 111) alors que la densité électronique atteint  $4 \cdot 10^{24} m^{-3}$ . D'autre part,  $\text{Al}^+$  est l'ion majoritaire. La table 4.2.2 compare plus précisément les valeurs obtenues dans les deux cas.

On constate que le rapport entre les densités électroniques est environ égal à 5 alors que celui concernant les températures électroniques est d'environ 2. Dans les deux cas, l'ion majoritaire est  $\text{Al}^+$ .

Ces différences peuvent résulter :

- d'hypothèses trop restrictives concernant le modèle A mis au point : en particulier, le couplage avec la surface étant indirect, il est possible que l'estimation de sa température soit incorrecte. Dans ces conditions, l'évaporation est mal reproduite, ce qui conduit à un écrantage de l'impulsion laser incorrectement calculé, donc à une sous-estimation de l'échauffement du plasma produit,
- d'une température maximale atteinte par la surface pendant l'expérience dépassant la température critique : si la température critique est dépassée, des micro-gouttelettes sont produites offrant une plus grande surface à l'évaporation. La densité du plasma est alors plus forte, l'absorption du rayonnement de l'impulsion supérieure et la densité comme la température électroniques sont alors plus élevées,
- d'une mauvaise estimation des paramètres électroniques, même si l'étude approfondie du spectre réalisée dans cette section présente un degré de cohérence satisfaisant.

Pour confirmer l'estimation des paramètres électroniques qui ont été obtenue par l'étude du spectre de raies et du continuum, nous avons décidé de procéder à une mesure directe par diffusion Thomson. L'intérêt de cette technique réside dans le fait qu'elle nécessite une procédure de calibration réduite (dans certaines conditions, l'analyse du spectre ne nécessite aucune calibration) et qu'elle est adaptée à l'étude des plasmas dont la pression électronique est suffisamment élevée [67, 69]. De plus, cette mesure directe doit permettre d'étendre la gamme temporelle de détermination de  $n_e$  et  $T_e$ .



# Chapitre 4.3

## Diffusion Thomson

La diffusion Thomson résulte de la diffusion élastique d'un rayonnement incident sur les charges libres (électrons ou ions) d'un milieu. Elle est mise à profit dans de nombreuses situations physiques lorsque la densité et/ou la température de ces charges libres est suffisamment élevée afin de les mesurer. Les conditions précédentes doivent être remplies car ce type de diffusion possède une section efficace extrêmement faible. Les plasmas de fusion constituent le type de plasma privilégié sondé par diffusion Thomson [96, 103, 110, 172, 177, 191] : on y observe en effet très facilement des densités électroniques supérieures à  $10^{20} \text{ m}^{-3}$  et des températures électroniques supérieures à plusieurs eV. La diffusion Thomson peut également être utilisée si les électrons ne sont pas maxwelliens : dans ce cas, le traitement des signaux de diffusion permet de reconstituer la fonction de distribution [72, 108, 130, 131].

Même si les faisceaux d'électrons restent un terrain de prédilection de l'utilisation de la diffusion Thomson [207], les applications dépassent largement le cadre de la fusion. On trouve désormais beaucoup d'études portant sur les cathodes creuses [115], les anodes creuses [249], les arcs [84, 124, 217, 218], les lampes [240, 258], les micro-décharges [175] ou sur les décharges radio-fréquence [239] ou haute pression [231]. Même si les seuils de détection des signaux de diffusion Thomson ont beaucoup diminué en raison notamment de l'amélioration de la sensibilité des détecteurs [153, 171], les niveaux de densité et de température électroniques obtenus dans les plasmas d'ablation laser sur des surfaces métalliques sont élevés et ont très vite fait l'objet de mesures par ce type de diffusion.

Des mesures ont été réalisées sur les plasmas obtenus par tir laser sur des cibles en or [83], sur des alliages or-béryllium [82] et sur l'aluminium [80, 98, 228, 252, 253]. Celles concernant l'aluminium ont bien sûr un intérêt particulier dans la mesure où toute notre étude a porté sur cet élément. Dans les références qui viennent d'être citées, les fluences sont très supérieures aux nôtres. Nous rappelons que le choix de réaliser des expériences à fluence modérée a été dicté par l'incapacité où se situe la modélisation actuelle des plasmas produits par laser d'intégrer à la fois de la cinétique détaillée où les états d'excitation sont supposés indépendants et des approches multiphasiques. De plus, les travaux précédemment cités ne s'intéressent pas à la formation du plasma : les paramètres électroniques mesurés ont en effet tous trait à la phase de recombinaison après la fin de l'impulsion laser. Il nous a par conséquent semblé pertinent et original de mettre en œuvre ce type de diagnostic afin d'accéder aux paramètres électroniques pendant la phase de création.

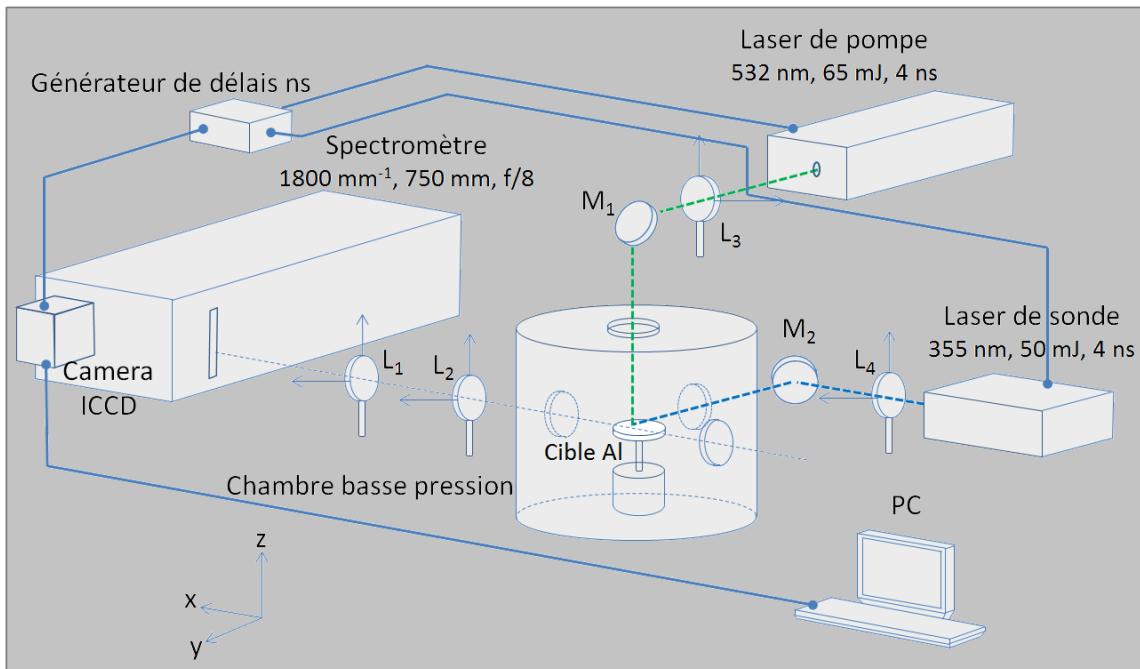


FIGURE 4.3.1 – Banc d'étude par diffusion Thomson du plasma produit par impulsion laser nanoseconde sur une cible d'aluminium à pression réduite.

### 4.3.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental de la figure 4.0.1 a été adapté pour permettre le sondage par diffusion Thomson du plasma produit par l'impulsion laser. La figure 4.3.1 présente le dispositif ainsi complété. Pour des raisons d'encombrement, le laser de sonde, contrôlé temporellement à l'aide d'un générateur de délais, est placé sur le côté et ses impulsions sont envoyées sur le plasma par le biais d'un miroir réglable en position. Le laser de sonde utilisé est de type Nd :YAG triplé à 355 nm afin d'éviter toute perturbation au niveau des spectres observés durant l'impulsion laser de pompe ( $\lambda_{las} = 532$  nm). Comme nous allons le voir dans la suite, les signaux Thomson présentent une luminance faible : tout rayonnement perturbateur est donc à proscrire.

La direction d'observation des spectres de diffusion est perpendiculaire à celle du faisceau de sonde. Cette disposition a été choisie afin de réduire les effets de lumière parasite préjudiciable à l'observation de ces spectres dans de bonnes conditions en raison de la faiblesse des luminances recueillies. Par ailleurs, nous verrons plus loin que cette disposition est favorable en termes d'efficacité de diffusion.

### 4.3.2 Calcul du spectre de diffusion Thomson

Pour permettre la détermination de la température et de la densité électroniques par mise en œuvre de la diffusion Thomson, le calcul du spectre attendu pour des conditions particulières est réalisé. Il suffit alors d'adapter ces conditions pour retrouver au mieux le spectre expérimental : les paramètres électroniques sont alors déterminés.

Les spectres Thomson résultent de la diffusion élastique d'un rayonnement incident faiblement énergétique sur les charges libres du milieu sondé. De manière très générale, lorsqu'un photon entre en collision avec par exemple un électron, ce dernier absorbe

le photon pendant une durée extrêmement brève. A l'issue, un autre photon est émis par l'électron dans une direction différente de celle du photon incident. Ce photon peut posséder la même énergie que le photon incident, donc la même quantité de mouvement : il n'y a donc pas de transfert de quantité de mouvement et la diffusion peut alors être qualifiée d'élastique. Ce cas correspond à la diffusion Thomson. Le photon émis à l'issue de l'interaction peut également présenter une fréquence inférieure : son énergie, donc sa quantité de mouvement, est inférieure à celle du photon incident. Dans ces conditions, la conservation de l'énergie indique que l'énergie cinétique de l'électron a varié : il y a donc eu transfert de quantité de mouvement et la diffusion peut alors être qualifiée d'inélastique. Ce second cas correspond à la diffusion Compton et est fréquemment observée dans le cas où l'énergie du photon incident excède quelques dizaines de keV. Les photons constituant le faisceau de sonde présentent une longueur d'onde  $\lambda_s = 355$  nm : leur énergie est d'environ 3,5 eV, donc suffisamment petite pour que seule la diffusion élastique soit observée.

Cette interprétation corpusculaire est évidemment incomplète : elle est incapable de rendre compte notamment des effets collectifs qui peuvent être observés lors de phénomènes de diffusion de ce type. L'onde incidente formant le faisceau de sonde se propage en effet dans un milieu constitué de neutres et de particules chargées caractérisé par sa longueur de Debye. Cette longueur caractéristique du plasma est celle sur laquelle peuvent être observés des écarts à l'électroneutralité résultant de l'agitation thermique. Elle est donnée par :

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B}{e^2 \left( \frac{n_e}{T_e} + \sum_Z Z^2 \frac{n_Z}{T_A} \right)}} \quad (4.3.1)$$

qui se réduit à :

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T_e}{e^2 n_e (Z + 1)}} \quad (4.3.2)$$

dans le cas où  $T_A \approx T_e$  et en supposant l'ion de charge  $Z+$  majoritaire ( $n_e = Z n_Z$ ). Cette longueur de Debye joue un rôle dans l'abaissement du potentiel d'ionisation comme l'équation (4.2.13) en témoigne.

Si la longueur d'onde du rayonnement incident est suffisamment grande face à la longueur de Debye, les électrons libres se mettent alors en mouvement de manière plus ou moins synchronisée : ces charges accélérées se mettent alors à rayonner d'une manière quasi semblable [123]. On parle alors de diffusion cohérente. A l'inverse, si la longueur d'onde est très faible face à la longueur de Debye, les électrons libres sont accélérés de manière décorrélée : leur accélération non synchronisée produit du rayonnement sans cohérence. On parle dans ces conditions de diffusion incohérente. Le nombre adimensionnel permettant de statuer sur la nature de la diffusion est le paramètre de diffusion Thomson  $\alpha$  défini par :

$$\alpha = \frac{1}{k \lambda_D} = \frac{\lambda_s}{4\pi \sin(\theta/2) \lambda_D} = \frac{\lambda_s}{4\pi \sin(\theta/2)} \sqrt{\frac{n_e e^2 (Z + 1)}{\epsilon_0 k_B T_e}} \quad (4.3.3)$$

où  $\theta$  est l'angle entre la direction du rayonnement laser de sonde et celle de la diffusion et  $k$  la norme de la différence entre le vecteur d'onde diffusé et le vecteur d'onde du

laser de sonde [64]. Ainsi, si  $\alpha \gg 1$ , la diffusion est cohérente. Si  $\alpha \ll 1$ , la diffusion est incohérente.

Les ions peuvent eux aussi diffuser le rayonnement incident de manière cohérente ou incohérente en fonction du paramètre  $\alpha$ . Cette diffusion ne doit pas être confondue avec la diffusion Rayleigh qui sera étudiée en détail plus loin : celle-ci a trait à l'interaction entre le rayonnement incident et les électrons du cortège électronique de l'ion menant à des effets de polarisation alors que la diffusion Thomson de l'ion résulte de son déplacement dans le champ électrique incident comme s'il était ponctuel. L'intensité de la diffusion Thomson de la part des ions est proportionnelle à leur charge  $Z$  et est prise en compte dans la suite, même si l'on peut s'attendre d'emblée à des effets très réduits en raison de leur masse nettement supérieure à celle des électrons.

Dans le cas de la diffusion cohérente comme dans celui de la diffusion incohérente, le rayonnement émis par un électron est semblable à celui d'un dipôle. On peut alors profiter de cette caractéristique en plaçant sur l'axe de mesure un polariseur afin de s'affranchir du rayonnement par exemple émis par le milieu : comme les luminances diffusées sont très faibles comme nous allons le voir, cela permet d'augmenter le rapport signal sur bruit.

La section efficace différentielle de diffusion Thomson d'un électron est donnée par :

$$\sigma_T(\phi) = \frac{d^2\sigma_T}{d^2\Omega} = \left( \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 m_e c^2} \right)^2 \sin^2 \phi \quad (4.3.4)$$

de sorte que la section efficace totale vaut :

$$\sigma_T = \int_{\theta=0}^{2\pi} \int_{\phi=0}^{\pi} \sigma_T(\phi) \sin^3 \phi d\theta d\phi \quad (4.3.5)$$

soit :

$$\sigma_T = \frac{8}{3}\pi r_e^2 \quad (4.3.6)$$

en définissant la distance caractéristique  $r_e$  par :

$$r_e = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 m_e c^2} \quad (4.3.7)$$

qu'on appelle également rayon classique de l'électron [245].

On obtient :  $\sigma_T = 6,6 \cdot 10^{-29} \text{ m}^2$ . Cette section efficace est très faible face à celle d'autres processus que nous avons vus antérieurement dans le chapitre 2.1 : pour ces processus, les ordres de grandeur sont en effet plutôt voisins de  $10^{-22}$  à  $10^{-19} \text{ m}^2$ . Cette valeur très faible de la section efficace justifie l'utilisation d'un second laser pour mettre en œuvre la diffusion Thomson : seul un rayonnement laser permet en effet d'obtenir des densités de flux radiatif  $\varphi_s$  suffisamment élevées pour que la diffusion soit détectable. Cette faible valeur de la section efficace présente malgré tout un avantage important : les caractéristiques du faisceau de sonde peuvent être considérées comme très faiblement modifiées par la diffusion Thomson à la traversée du milieu sondé. Si le faisceau de sonde présente des modifications, elles ne peuvent être dues qu'à d'autres phénomènes dont les sections efficaces sont nettement plus importantes comme l'ionisation multiphotonique ou le Bremsstrahlung inverse. Nous discutons de ce point important un peu plus loin.

Prenant en compte la diffusion des électrons comme des ions, la puissance du rayonnement diffusé par unité de volume, par unité d'angle solide dans la direction  $(\theta, \phi)$  et par

intervalle spectral vaut :

$$p_T(\lambda, T_e, n_e, T_A, \theta, \phi, \varphi_s) = \varphi_s n_e \sigma_T(\phi) D_T(\lambda, T_e, T_A, \theta, \phi) \quad (4.3.8)$$

où  $D_T(\lambda, T_e, T_A, \theta, \phi)$  est une fonction spectrale et directionnelle rendant compte de toutes les propriétés de la diffusion Thomson telle que :

$$D_T(\lambda, T_e, T_A, \theta, \phi) = \frac{2\pi c}{\lambda^2} S_T(\lambda, T_e, T_A) f(\theta, \phi) \quad (4.3.9)$$

Ainsi mise sous cette forme,  $D_T(\lambda, T_e, T_A, \theta, \phi)$  est aisément calculable car :

- la fonction angulaire  $f(\theta, \phi) = 1$  dans le cas de notre dispositif expérimental : dans ces conditions, elle est maximale. C'est une des raisons pour lesquelles nous avons choisi d'observer la diffusion à  $\pi/2$  dans le plan perpendiculaire à la polarisation du laser de sonde,
- la fonction  $S_T(\lambda, T_e, T_A)$ , exprimée en  $\text{s sr}^{-1}$ , a été calculée par Salpeter [204] pour les électrons et les ions par :

$$S_T(\lambda, T_e, T_A) = \left| \frac{1}{1 + \alpha^2 W(x_e)} \right|^2 \frac{e^{-x_e^2}}{k v_e \sqrt{\pi}} + Z \left( \frac{\alpha^2}{1 + \alpha^2} \right)^2 \left| \frac{1}{1 + \beta^2 W(x_i)} \right|^2 \frac{e^{-x_i^2}}{k v_i \sqrt{\pi}} \quad (4.3.10)$$

où les indices  $e$  et  $i$  ont respectivement trait aux électrons et aux ions.

Dans l'équation précédente :

- $x_{e,i} = \frac{2\pi c}{k \lambda v_{e,i}} \left( 1 - \frac{\lambda}{\lambda_s} \right)$ ,
- $v_{e,i} = \sqrt{\frac{2k_B T_{e,A}}{m_{e,i}}}$  est la vitesse thermique moyenne des électrons ou des ions,
- $\beta^2 = Z \frac{\alpha^2}{1 + \alpha^2} \frac{T_e}{T_A}$ ,
- $W_{e,i}(x_{e,i}) = 1 - 2 x_{e,i} \int_0^{x_{e,i}} e^{p^2 - x_{e,i}^2} dp - i \sqrt{\pi} x_{e,i} e^{-x_{e,i}^2}$ .

Le premier terme de l'équation (4.3.10) rend compte de l'influence des électrons sur la diffusion Thomson et le second terme de celle des ions : on parle ainsi respectivement de contribution électronique et de contribution ionique à la diffusion. Ce second terme apparaît d'ores et déjà faible devant le premier en raison de l'influence de la masse  $m_i$  des ions présente au dénominateur de la vitesse  $v_i$ . D'autre part, nous avons choisi une longueur d'onde  $\lambda_s$  plutôt faible pour le laser de sonde, ce qui diminue le paramètre de diffusion  $\alpha$  : l'influence de la contribution ionique dans l'équation (4.3.10) est d'autant réduite.

Supposant l'absence de diffusion multiple, d'absorption du rayonnement de longueur d'onde  $\lambda_s$  et négligeant l'influence des gradients du plasma, la luminance dans la direction d'observation ( $\theta = \phi = \pi/2$ ) vaut alors :

$$L(\lambda, T_e, n_e, T_A, \varphi_s, \delta) = p_T(\lambda, T_e, n_e, T_A, \pi/2, \pi/2, \varphi_s) \times \delta \quad (4.3.11)$$

où  $\delta = \min(X, d_s)$  est la dimension la plus faible entre l'épaisseur  $X$  du plasma et le diamètre  $d_s$  du faisceau de sonde. En effet, seule la zone du plasma éclairée par le faisceau de sonde peut diffuser la lumière incidente.

Les équations précédentes permettent de calculer le spectre présenté sur la figure 4.3.2. Les conditions choisies sont celles ayant été déterminées précédemment en analysant les

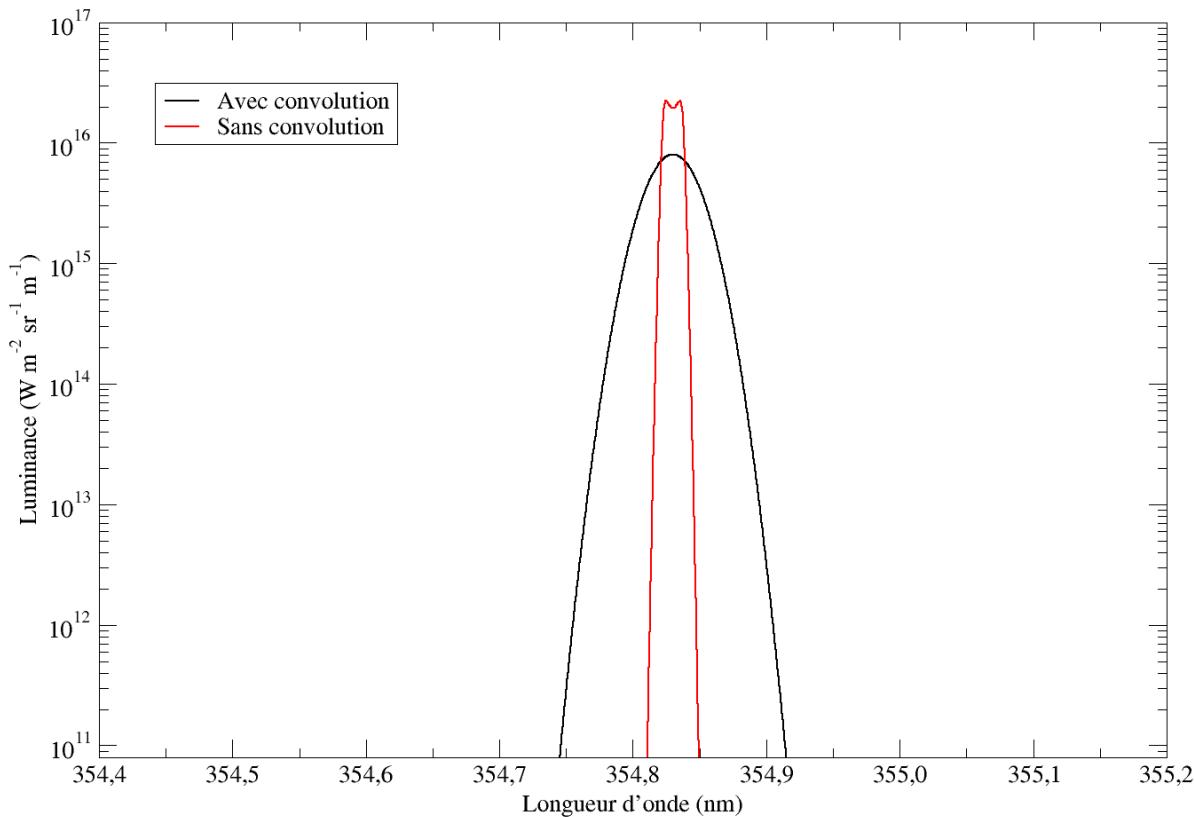


FIGURE 4.3.2 – Spectre de diffusion Thomson convolué ou non par la fonction d'appareil ( $\delta\lambda_{app} = 0,04 \text{ nm}$ ) obtenu dans les conditions suivantes :  $T_e = T_A = 15500 \text{ K}$ ,  $n_e = 1,5 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-3}$ ,  $\delta = X = 300 \mu\text{m}$ ,  $\varphi_s = \varphi_{las}^{\max} = 2 \cdot 10^{13} \text{ W m}^{-2}$ . Dans ces conditions l'équation (4.3.3) mène à :  $\alpha = 25,5$ .

propriétés des raies émises sur la gamme [680 ; 710] nm et du continuum (table 4.2.1) :  $T_e = 15500 \text{ K}$ ,  $n_e = 1,5 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-3}$ ,  $\delta = X = 300 \mu\text{m}$ . De plus, nous avons choisi une densité de flux telle que  $\varphi_s = \varphi_{las}^{\max} = 2 \cdot 10^{13} \text{ W m}^{-2}$  pour réaliser des comparaisons entre luminances. Ce choix résulte également des résultats mis en évidence dans le chapitre 3.1 où ce niveau de densité de flux mène à des valeurs de la densité électronique assez faible et donc où l'influence de l'impulsion laser de sonde sur le plasma déjà formé peut être considéré comme négligeable. Par ailleurs, on suppose  $T_A = T_e$  ce qui revient à surestimer la contribution ionique du spectre de diffusion Thomson. La longueur d'onde exacte de la troisième harmonique du laser Nd :YAG a été prise en compte : elle vaut 354,8279 nm ( $28182,68 \text{ cm}^{-1}$ ) [209]. Enfin, la fonction d'appareil du spectromètre est prise en compte sous la forme d'une fonction gaussienne de largeur à mi-hauteur  $\delta\lambda_{app} = 0,04 \text{ nm}$  qui est classique pour le type de réseau dont il est muni et la largeur de fente d'entrée utilisée.

On constate que la luminance maximale obtenue est du même ordre de grandeur que celle émise par le continuum. Une analyse détaillée des contributions électronique et ionique montre que la contribution ionique est totalement négligeable dans les conditions retenues ici. Le spectre ne présente aucune caractéristique particulière, en dehors d'une petite diminution autour de la longueur d'onde centrale : après convolution, cette particularité n'est plus visible et le spectre présente alors une forme gaussienne dont l'élargissement est directement fonction de la température et de la densité électroniques ainsi que de la largeur de la fonction d'appareil. Cependant, dans des conditions de densité inférieure, deux "satellites" émergent à des longueurs d'onde éloignées de la longueur

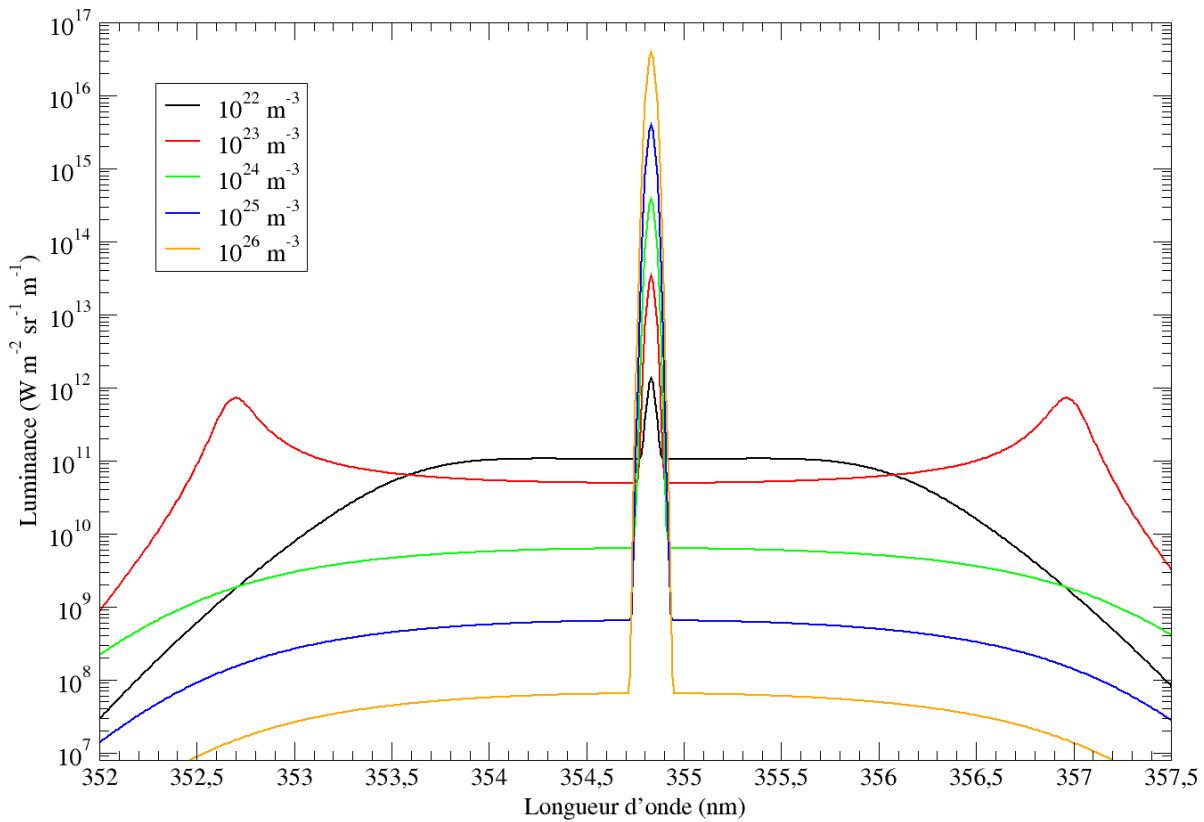


FIGURE 4.3.3 – Spectres de diffusion Thomson convolus par la fonction d'appareil ( $\delta\lambda_{app} = 0,04 \text{ nm}$ ) obtenus dans les conditions :  $T_e = T_A = 10000 \text{ K}$ ,  $\delta = X = 300 \mu\text{m}$ ,  $\varphi_s = \varphi_{las}^{max} = 2.10^{13} \text{ W m}^{-2}$  pour différentes densités électroniques. On peut constater l'apparition de satellites lorsque  $n_e = 10^{23} \text{ m}^{-3}$ , ainsi lorsque  $\alpha = 2,59$ .

d'onde de sonde  $\lambda_s$  : l'intervalle spectral en rapport dépend essentiellement de la densité électronique comme nous allons le voir. Dans la suite, tous les spectres sont convolus avec une fonction d'appareil gaussienne de  $\delta\lambda_{app} = 0,04 \text{ nm}$  de largeur à mi-hauteur et l'ion majoritaire considéré est  $\text{Al}^+$ .

### 4.3.2.a Analyse des satellites

Les figures 4.3.3 et 4.3.4 illustrent l'allure des spectres pour différentes valeurs de  $n_e$  lorsque  $T_e = 10000 \text{ K}$  et  $15000 \text{ K}$  respectivement. Les spectres obtenus à  $20000 \text{ K}$  ne sont guère différents des précédents : c'est autour de  $n_e = 10^{23} \text{ m}^{-3}$  que l'apparition des satellites est observée. Par ailleurs, plus la température électronique est élevée et plus le satellite est spectralement éloigné du pic central.

A la température  $T_e = 15500 \text{ K}$ , la figure 4.3.5 montre l'évolution de la forme d'un des satellites en fonction de la densité électronique. On constate que cette partie du spectre présente une très forte sensibilité à la valeur de  $n_e$ .

Ces caractéristiques expliquent pourquoi il est parfois inutile de calibrer le spectre de diffusion : il suffit alors de mesurer l'intervalle spectral  $\Delta\lambda_{sat}$  entre le maximum du satellite et la longueur d'onde de sonde, cette différence étant liée à la densité électronique. La figure précédente montre que cette procédure ne peut être adoptée que sur un intervalle restreint concernant  $n_e$ . Dans le cas de l'harmonique triplée du laser Nd :YAG utilisée et pour une température électronique de  $15500 \text{ K}$ , les calculs montrent que ce décalage

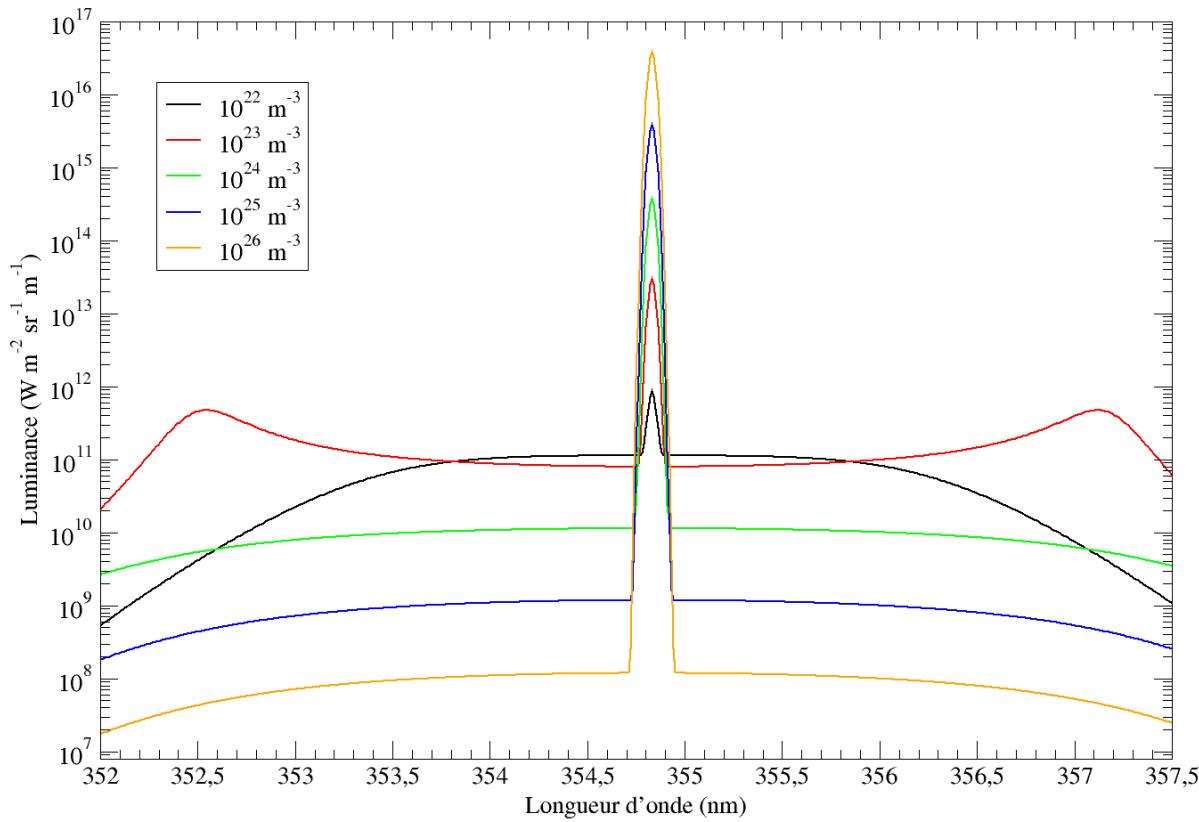


FIGURE 4.3.4 – Figure semblable à la figure 4.3.3 mais avec  $T_e = 15000$  K. Lorsque  $n_e = 10^{23} \text{ m}^{-3}$ , on a  $\alpha = 2,11$ .

spectral est relié à la densité électronique selon l'équation :

$$\Delta\lambda_{sat,nm,15500K} = 2,27 \left( \frac{n_{e,m^{-3}}}{10^{23}} \right)^{0,362} \quad (4.3.12)$$

sur l'intervalle  $5.10^{22} \text{ m}^{-3} < n_e < 5.10^{23} \text{ m}^{-3}$ . Les mêmes déterminations réalisées pour  $T_e = 10000$  K et  $20000$  K conduisent à :

$$\Delta\lambda_{sat,nm,10000K} = 2,15 \left( \frac{n_{e,m^{-3}}}{10^{23}} \right)^{0,371} \quad (4.3.13)$$

et

$$\Delta\lambda_{sat,nm,20000K} = 2,34 \left( \frac{n_{e,m^{-3}}}{10^{23}} \right)^{0,366} \quad (4.3.14)$$

respectivement pour les mêmes gammes de densité électronique.

Les trois résultats précédents peuvent être interpolés sous la forme plus générale suivante :

$$\Delta\lambda_{sat,nm} = 2,26 \left( \frac{T_{e,K}}{15000} \right)^{0,119} \left[ \frac{n_{e,m^{-3}}}{10^{23}} \right]^{0,366} \left( \frac{T_{e,K}}{15000} \right)^{-0,0242} \quad (4.3.15)$$

et peut être utilisée pour  $T_e \in [10000 ; 20000]$  K et  $n_e \in [5.10^{22} ; 5.10^{23}] \text{ m}^{-3}$ .

La présence de ces satellites est bien connue et a été amplement commentée dans la littérature. Leur existence résulte du comportement de la contribution électronique, la contribution ionique jouant un rôle négligeable. Plus précisément, leur existence résulte

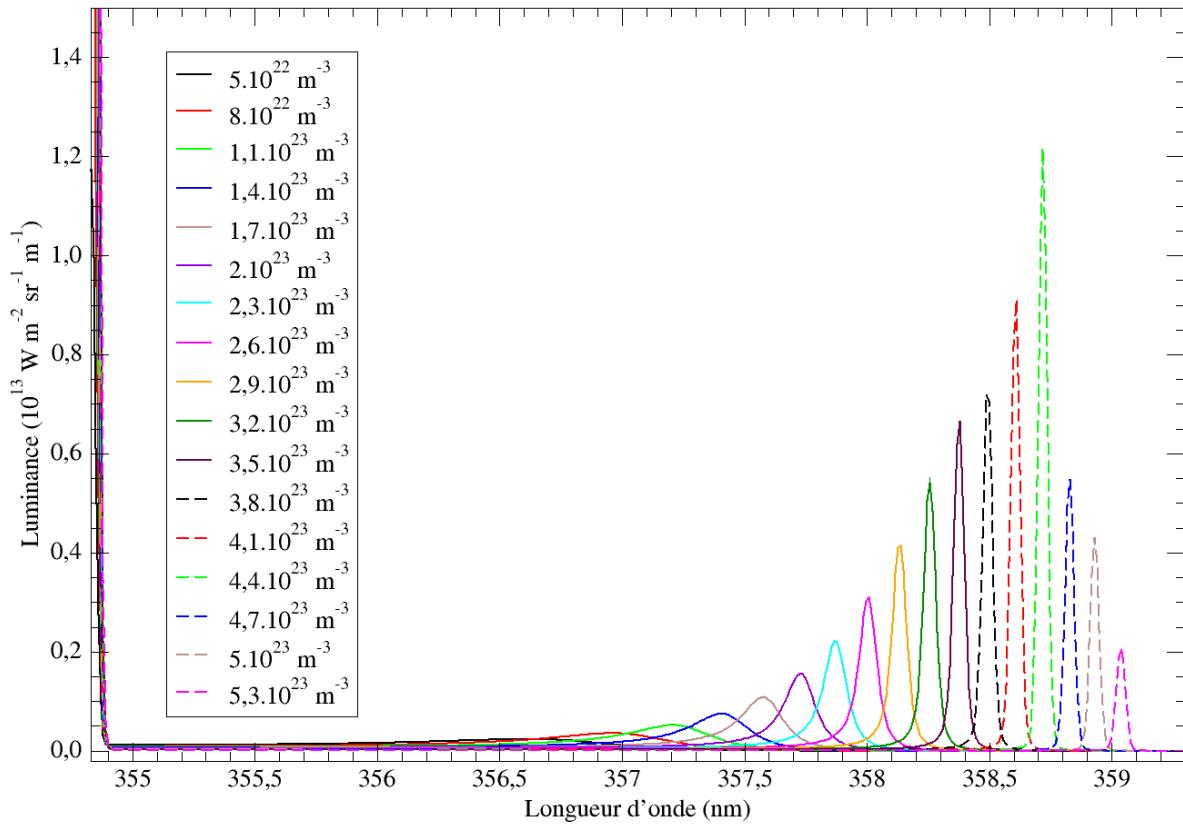


FIGURE 4.3.5 – Dynamique d'un des satellites de diffusion Thomson en fonction de la densité électronique ( $T_e = 15500$  K).  $\alpha = 1,47$  pour  $n_e = 5.10^{22}$  m<sup>-3</sup> et  $\alpha = 4,36$  pour  $n_e = 4,4.10^{23}$  m<sup>-3</sup>.

du comportement du terme  $\left| \frac{1}{1+\alpha^2 W(x_e)} \right|^2$  placé devant  $\frac{e^{-x_e^2}}{k v_e \sqrt{\pi}}$ . Même si la contribution électronique est seule responsable de l'existence de ces satellites, les ions y jouent tout de même un rôle par l'intermédiaire de la longueur de Debye par l'équation (4.3.2) : le paramètre  $\alpha$  est alors légèrement modifié par l'intermédiaire de  $\sqrt{Z + 1}$ .

Les calculs précédents peuvent également être menés à 532 nm dans le cas d'autres plasmas où des mesures par diffusion Thomson seraient réalisées. En multipliant ces calculs, on constate que les décalages spectraux sont deux fois plus élevés à 532 nm qu'à 355 nm. De plus, l'intervalle en densité électronique sur lequel on les observe est réduit par rapport à celui mis en évidence à 355 nm : à 532 nm,  $n_e$  doit appartenir à l'intervalle [2.10<sup>22</sup> ; 2.10<sup>23</sup>] m<sup>-3</sup>. Enfin, les luminances des satellites sont les mêmes pour des conditions identiques : ceci résulte de l'indépendance de la section efficace différentielle de diffusion Thomson vis-à-vis de la longueur d'onde du rayonnement incident illustrée par l'équation (4.3.4). Leur décalage par rapport à la longueur d'onde  $\lambda_s$  du laser de sonde peut être mis finalement sous la forme :

$$\Delta\lambda_{sat,nm} = 2,26 \left( \frac{\lambda_{s,nm}}{354,83} \right)^{1,71} \left( \frac{T_{e,K}}{15000} \right)^{0,119} \left[ \frac{n_{e,m^{-3}}}{10^{23}} \right]^{0,366} \left( \frac{T_{e,K}}{15000} \right)^{-0,0242} \quad (4.3.16)$$

pour  $n_e$  voisin de 10<sup>23</sup> m<sup>-3</sup> et  $T_e$  voisin de 15000 K.

Concernant le pic central de diffusion correspondant à  $\lambda_s$ , sa luminance maximale est systématiquement plus élevée que celle correspondant aux satellites. Son élargissement

résulte du terme  $\frac{e^{-x_e^2}}{k v_e \sqrt{\pi}}$  apparaissant dans la contribution électronique : cet élargissement est d'autant plus grand que la longueur d'onde utilisée pour réaliser la diffusion est élevée.

Utiliser la troisième harmonique d'un laser Nd :YAG pour réaliser une expérience de diffusion Thomson peut donc sembler être moins approprié. Nous rappelons que ce choix a été guidé par le souhait de ne pas être gêné par l'impulsion de pompe, l'idée étant d'avoir la possibilité de suivre l'évolution de la densité et de la température électroniques pendant la création du plasma.

Commentons pour terminer la largeur à mi-hauteur du satellite. Celle-ci dépend à la fois de la température et de la densité électroniques. Plus  $T_e$  est élevée et plus sa largeur est importante. Plus  $n_e$  est forte et plus cette largeur diminue. La figure 4.3.5 illustre en particulier cette dépendance : pour une densité électronique suffisamment élevée (ici  $n_e \approx 4.10^{23} \text{ m}^{-3}$ ), la diminution de la largeur spectrale du satellite est telle qu'elle équivaut à celle de la fonction d'appareil.

#### 4.3.2.b Analyse du pic central de diffusion

L'élargissement du pic central demeure plus faible que celle de la fonction d'appareil, de sorte que sa mesure ne permet pas d'accéder directement aux paramètres électroniques. C'est pourquoi l'étalonnage est indispensable dans ce cas. L'intensité de ce pic, une fois connue par voie expérimentale, permet d'en déduire la densité électronique. Cette intensité vaut en effet :

$$I(n_e, \delta) = \int L(\lambda, T_e, n_e, T_A, \varphi_s, \delta) d\lambda \quad (4.3.17)$$

Retenant les équations (4.3.8) à (4.3.11) et en remarquant que le pic central de diffusion résulte de l'influence des deux contributions électronique et ionique de l'équation (4.3.10), on en déduit :

$$I(n_e, \delta) = \varphi_s n_e \sigma_T(\pi/2) F_{app}(\lambda_s, n_e, T_e, T_i, Z, m_i, \delta\lambda_{app}) \delta \quad (4.3.18)$$

dans la direction  $\phi = \pi/2$  selon laquelle les signaux diffusés sont collectés.  $F_{app}$  est une fonction de référence qui dépend entre autres de la masse  $m_i$  des ions impliqués. Cette fonction présente également une dépendance vis-à-vis de  $T_i$  qui demeure assez faible. Supposant  $T_i = T_e = 15500 \text{ K}$ , nous avons calculé les variations de  $F_{app}$  pour les ions  $\text{Al}^+$  en fonction de  $n_e$  pour  $\lambda_s = 354,83 \text{ nm}$ . La figure 4.3.6 illustre les résultats obtenus.

On constate que la fonction varie entre 0 et 0,5 lorsque  $n_e$  passe de  $10^{22} \text{ m}^{-3}$  à  $10^{24} \text{ m}^{-3}$ . Cette variation est faible : on peut donc considérer en première approximation que l'intensité du pic central est directement proportionnelle à la densité électronique. L'équation (4.3.18) peut alors être directement utilisée en supposant que  $F_{app} = 0,25$ . A moins d'utiliser une procédure itérative permettant de déterminer  $n_e$  compte tenu des variations de  $F_{app}$ , cette hypothèse conduit à une incertitude de  $\pm 50\%$  sur la détermination de la densité électronique.

L'étude du pic central de diffusion est souvent difficile voire impossible en raison de la diffusion induite par les autres espèces du plasma à la longueur d'onde du laser de sonde. Ces phénomènes de diffusion résultent de l'interaction entre le rayonnement incident et les électrons des cortèges électroniques des autres espèces : il s'agit de la diffusion Rayleigh que nous analysons en détail dans la section suivante.

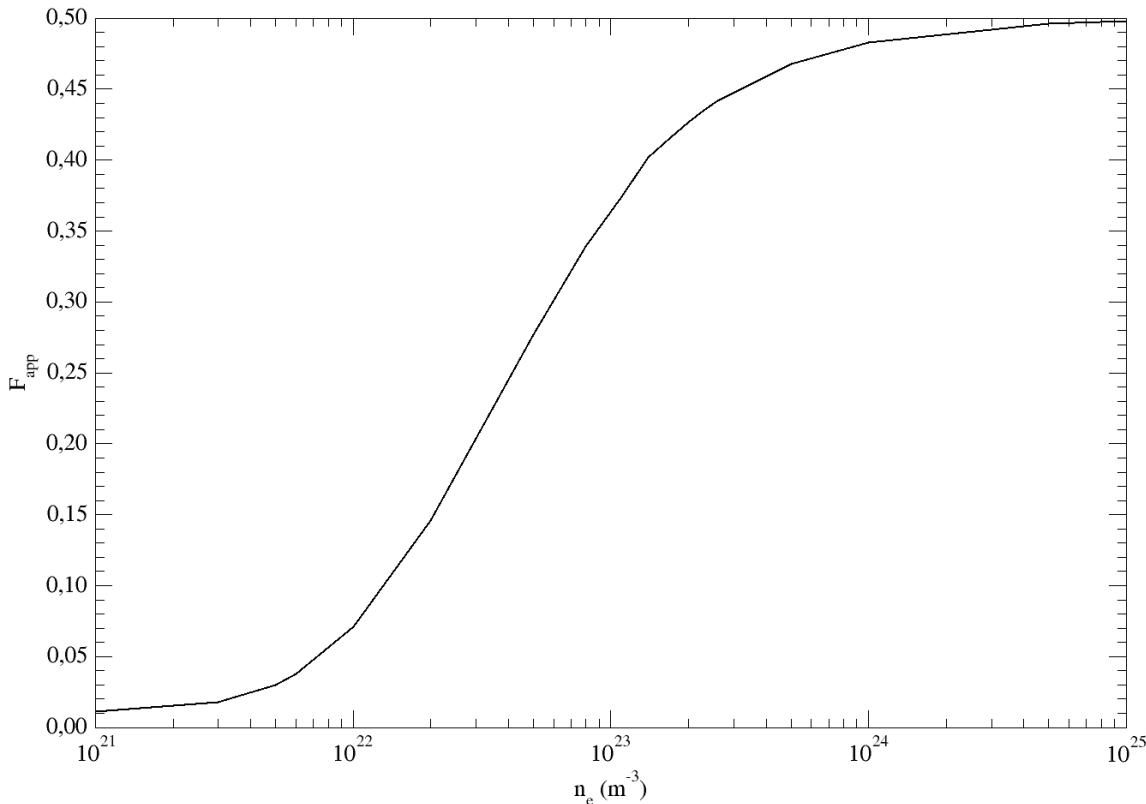


FIGURE 4.3.6 – Évolution du paramètre adimensionnel  $F_{app}$  en fonction de  $n_e$  pour les conditions de référence choisies : ions Al<sup>+</sup>,  $T_i = T_e = 15500$  K,  $\lambda_s = 354,83$  nm.

### 4.3.3 Influence de la diffusion Rayleigh

Sous l'action du champ électrique  $\vec{E}(t)$  du rayonnement du laser de sonde, le cortège électronique d'un lourd (neutre ou ion) est modifié. Cette modification porte sur la répartition dans l'espace de la charge électrique : elle induit par conséquent un moment dipolaire fonction du temps et noté  $\vec{p}(t)$  dans la suite. Ce moment dipolaire est lié en première approximation au champ électrique  $\vec{E}(t)$  par l'équation :

$$\vec{p}(t) = \alpha_{pol} \vec{E}(t) \quad (4.3.19)$$

où  $\alpha_{pol}$  est la polarisabilité électronique du lourd. Selon la fréquence de l'onde et les temps caractéristiques de relaxation du cortège électronique de la particule, le moment dipolaire induit peut présenter un déphasage. Nous supposons dans la suite que tel n'est pas le cas, autrement dit que les temps caractéristiques de relaxation sont suffisamment courts par rapport à la période de l'onde. La polarisabilité est alors qualifiée de statique [161].

La particule émet alors de la lumière en raison de la variation de son moment dipolaire au cours du temps. Ce rayonnement constitue la lumière diffusée et la diffusion en rapport est qualifiée de diffusion Rayleigh. On constate que le mécanisme qui vient d'être décrit ressemble de très près à celui de la diffusion Thomson : les seules différences résident dans le type d'électrons mis en jeu (libres pour la diffusion Thomson, liés pour la diffusion Rayleigh) et les aspects collectifs pris en compte dans le cas Rayleigh par l'intermédiaire de la polarisabilité. A l'échelle d'un lourd diffusant la lumière, la section efficace différentielle prend donc alors une forme tout à fait semblable à celle rendant compte de la diffusion

de la lumière par un électron. Celle-ci vaut :

$$\sigma_R(\phi) = \frac{d^2\sigma_R}{d^2\Omega} = \frac{\pi^2 \alpha_{pol}^2}{\epsilon_0^2 \lambda^4} \sin^2 \phi \quad (4.3.20)$$

à la longueur d'onde  $\lambda$ . La section efficace totale vaut alors :

$$\sigma_R = \int_{\theta=0}^{2\pi} \int_{\phi=0}^{\pi} \sigma_R(\phi) \sin^3 \phi d\theta d\phi = \frac{8\pi^3 \alpha_{pol}^2}{3\epsilon_0^2 \lambda^4} \quad (4.3.21)$$

La polarisabilité électronique  $\alpha_{pol}$  varie assez fortement d'un type de particule à l'autre. Néanmoins, une valeur voisine de  $10^{-40} \text{ C}^2 \text{ m}^2 \text{ J}^{-1}$  est couramment obtenue de sorte que l'ordre de grandeur de la section efficace totale de diffusion Rayleigh vers  $\lambda = 355 \text{ nm}$  vaut :  $\sigma_R = 7.10^{-31} \text{ m}^2$ . Cette section efficace est 100 fois inférieure à celle de la diffusion Thomson. Le milieu étant constitué de plusieurs types de lourds, il faut évidemment disposer de la polarisabilité électronique de chacune des espèces concernées. La polarisabilité peut être exprimée en u.a., en  $\text{m}^3$  ou en  $\text{C}^2 \text{ m}^2 \text{ J}^{-1}$  : c'est cette dernière unité qui sera utilisée de manière systématique. Pour Al, les valeurs expérimentales de la polarisabilité électronique sont dues à Hati et Datta [97] et Milani *et al.* [160] : ces résultats présentent une différence de l'ordre de 20 %. D'autre part, Dmitrieva et Plindov [59], Fuentealba [73], Ghanty et Ghosh [81], Gollisch [85] et Hibbert [105] développent des approches théoriques menant à des valeurs de  $\alpha_{pol}$  très proches les unes des autres (entre  $9.4.10^{-40} \text{ C}^2 \text{ m}^2 \text{ J}^{-1}$  et  $10.9.10^{-40} \text{ C}^2 \text{ m}^2 \text{ J}^{-1}$ ) en très bon accord avec les résultats expérimentaux de Hati et Datta : la valeur  $\alpha_{pol} = 9.3.10^{-40} \text{ C}^2 \text{ m}^2 \text{ J}^{-1}$  a donc été retenue pour Al. Pour ce qui concerne  $\text{Al}^+$ , aucune valeur expérimentale de la polarisabilité électronique ne semble avoir été déterminée. Les résultats théoriques basés sur des approches différentes aboutissent à des valeurs très proches de  $4.0.10^{-40} \text{ C}^2 \text{ m}^2 \text{ J}^{-1}$  pour Archibong et Thakkar [13], Hamonou et Hibbert [93], Mitroy *et al.* [163] et Reshetnikov *et al.* [195] et de  $4.1.10^{-40} \text{ C}^2 \text{ m}^2 \text{ J}^{-1}$  pour Rosenband *et al.* [199] : nous avons donc adopté la valeur  $\alpha_{pol} = 4.0.10^{-40} \text{ C}^2 \text{ m}^2 \text{ J}^{-1}$  pour la polarisabilité électronique de  $\text{Al}^+$ . La valeur expérimentale de  $\alpha_{pol} = 2.4.10^{-40} \text{ C}^2 \text{ m}^2 \text{ J}^{-1}$  est en très bon accord concernant  $\text{Al}^{2+}$  avec les résultats obtenus par des approches théoriques par Ghanty et Ghosh [81], Hamonou et Hibbert [92] ou encore Kondratjev *et al.* [126] : cette valeur a été retenue. Enfin, hormis les résultats 10 fois trop forts obtenus par Grimes et Grimes [89], les valeurs obtenues théoriquement par Born et Heisenberg [24], Fajans et Joos [66] et Pauling [181] sont légèrement supérieures à la valeur expérimentale déterminée par Hati et Datta [97]. En revanche, celle obtenue par Schmidt *et al.* [206] y est très bien corrélée. La valeur expérimentale a donc été retenue. L'ensemble de ces données est regroupé dans la table 4.3.1.

Comme dans le cas de la diffusion Thomson, des effets collectifs résultant d'un couplage entre les particules diffusant la lumière peuvent apparaître. Ces effets collectifs résultent ici d'ondes acoustiques présentent au sein du milieu sondé. Si la longueur d'onde de ces ondes acoustiques est inférieure ou du même ordre de grandeur que celle du rayonnement dirigé vers le milieu, la situation est alors quasiment semblable à la diffusion Thomson des électrons se produisant lorsque  $\alpha$  est grand devant 1 : les dipôles induits oscillent en phase conduisant à un surcroît de lumière diffusée [179]. Ces ondes acoustiques ont en général dans les gaz des longueurs d'onde assez élevées, ce qui dans la plupart des cas interdit de pouvoir observer ce type de diffusion collective qu'on qualifie encore de diffusion cohérente. Si la longueur d'onde acoustique est réduite, comme par exemple dans le cas de gaz de masse molaire élevée ou bien de milieux dont la température est modérée

Espèce	$\alpha_{pol}$ ( $10^{-40}$ C $^2$ m $^2$ J $^{-1}$ )	Exp./Thé.	Source
Al	9,3	Exp.	[97]
Al	7,6	Exp.	[160]
Al	9,6	Thé.	[59]
Al	9,6	Thé.	[73]
Al	9,4	Thé.	[81]
Al	10,9	Thé.	[85]
Al	9,8	Thé.	[105]
Al $^+$	4,0	Thé.	[13]
Al $^+$	4,0	Thé.	[93]
Al $^+$	4,0	Thé.	[163]
Al $^+$	4,0	Thé.	[195]
Al $^+$	4,1	Thé.	[199]
Al $^{2+}$	2,4	Exp.	[97]
Al $^{2+}$	2,8	Thé.	[81]
Al $^{2+}$	2,4	Thé.	[92]
Al $^{2+}$	2,3	Thé.	[126]
Al $^{3+}$	0,044	Exp.	[97]
Al $^{3+}$	0,072	Thé	[24]
Al $^{3+}$	0,074	Thé	[66]
Al $^{3+}$	0,88	Thé.	[89]
Al $^{3+}$	0,058	Thé	[181]
Al $^{3+}$	0,044	Thé.	[206]

TABLE 4.3.1 – Polarisabilité électronique de Al, Al $^+$ , Al $^{2+}$  et Al $^{3+}$ .

ou dont la pression est élevée [209], on observe alors des satellites comme dans le cas de la diffusion Thomson cohérente : ce type de diffusion est appelé diffusion Rayleigh-Brillouin.

Le paramètre adimensionnel rendant compte du type de diffusion attendu vaut :

$$\gamma = \frac{1}{k \lambda_A} = \frac{\lambda_s \nu}{4 \pi \sin(\theta/2)} \sqrt{\frac{m}{2 k_B T_A}} \quad (4.3.22)$$

où  $\lambda_A$  est la longueur d'onde acoustique du milieu et  $k$  la même norme que celle définie à propos de la diffusion Thomson [cf. équation (4.3.3)]. Dans l'équation (4.3.22),  $\nu$  est la fréquence de collision et  $m$  la masse des particules diffusant la lumière. Dans notre cas, on peut estimer  $\nu \approx 5$  GHz, d'où  $\gamma \approx 0,07$ . On est donc confronté au cas où  $\gamma \ll 1$  : la diffusion est donc incohérente.

Le calcul du spectre est dans ces conditions tout à fait semblable à celui de la diffusion Thomson incohérente où  $\sigma_T(\phi)$  est remplacé par  $\sigma_R(\phi)$ . La fonction  $S_T(\lambda, T_e, T_A)$  est remplacée par la fonction :

$$S_R(\lambda, T_A) = \frac{e^{-x_i^2}}{k v_i \sqrt{\pi}} \quad (4.3.23)$$

où  $x_i$  a la même définition que pour la diffusion Thomson.

Le plasma est constitué d'atomes et d'ions. En négligeant de nouveau les phénomènes de diffusion multiple, l'absorption du rayonnement de sonde à  $\lambda_s$  et en supposant le milieu

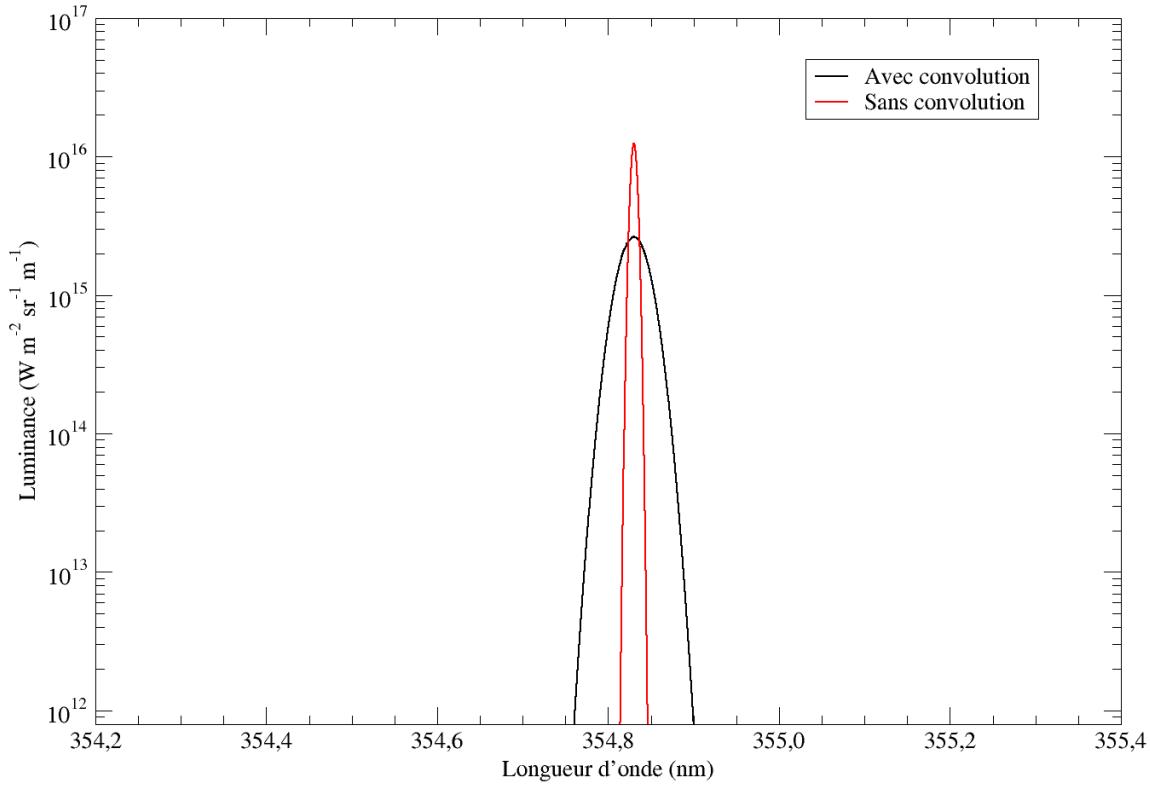


FIGURE 4.3.7 – Spectre de diffusion Rayleigh convolués ou non par la fonction d'appareil ( $\delta\lambda_{app} = 0,04 \text{ nm}$ ) obtenu dans les conditions suivantes :  $T_A = 15500 \text{ K}$ ,  $n_Z = 1,5 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-3}$ ,  $\delta = X = 300 \mu\text{m}$ ,  $\varphi_s = \varphi_{las}^{max} = 2 \cdot 10^{13} \text{ W m}^{-2}$  en supposant l'ion  $\text{Al}^+$  majoritaire.

homogène, la luminance que ce mélange diffuse par diffusion Rayleigh vaut :

$$L(\lambda, T_A, n_0, n_1, \dots, n_{Z_{max}}, \varphi_s, \delta) = \sum_{Z=0}^{Z_{max}} p_R(\lambda, T_A, \pi/2, \pi/2, \varphi_s) \times \delta \quad (4.3.24)$$

autrement dit :

$$L(\lambda, T_A, n_0, n_1, \dots, n_{Z_{max}}, \varphi_s, \delta) = \frac{2\pi^3 c}{\epsilon_0^2 \lambda^6} \frac{e^{-x_i^2}}{k v_i \sqrt{\pi}} \delta \varphi_s \sum_{Z=0}^{Z_{max}} n_Z \alpha_{pol}^2(Z) \quad (4.3.25)$$

Si l'on suppose l'ion de charge  $Z+$  majoritaire, l'équation précédente se réduit à :

$$L(\lambda, T_A, n_Z, \varphi_s, \delta) = \frac{2\pi^3 c}{\epsilon_0^2 \lambda^6} \frac{e^{-x_i^2}}{k v_i \sqrt{\pi}} \delta \varphi_s n_Z \alpha_{pol}^2(Z) \quad (4.3.26)$$

La figure 4.3.7 illustre les résultats obtenus à partir de l'équation (4.3.26) dans les mêmes conditions que la figure 4.3.2. De prime abord, les spectres paraissent assez voisins : il est néanmoins nécessaire de les analyser de plus près. La figure 4.3.8 compare les deux spectres selon une échelle linéaire pour des conditions semblables, l'ion majoritaire considéré étant  $\text{Al}^+$ .

On peut constater que l'élargissement du spectre est essentiellement dû à la diffusion Thomson. Cette caractéristique résulte de la polarisabilité électronique assez faible de l'ion  $\text{Al}^+$  : ainsi, même si la diffusion est réalisée à 355 nm, la dépendance en  $\lambda^{-4}$  de

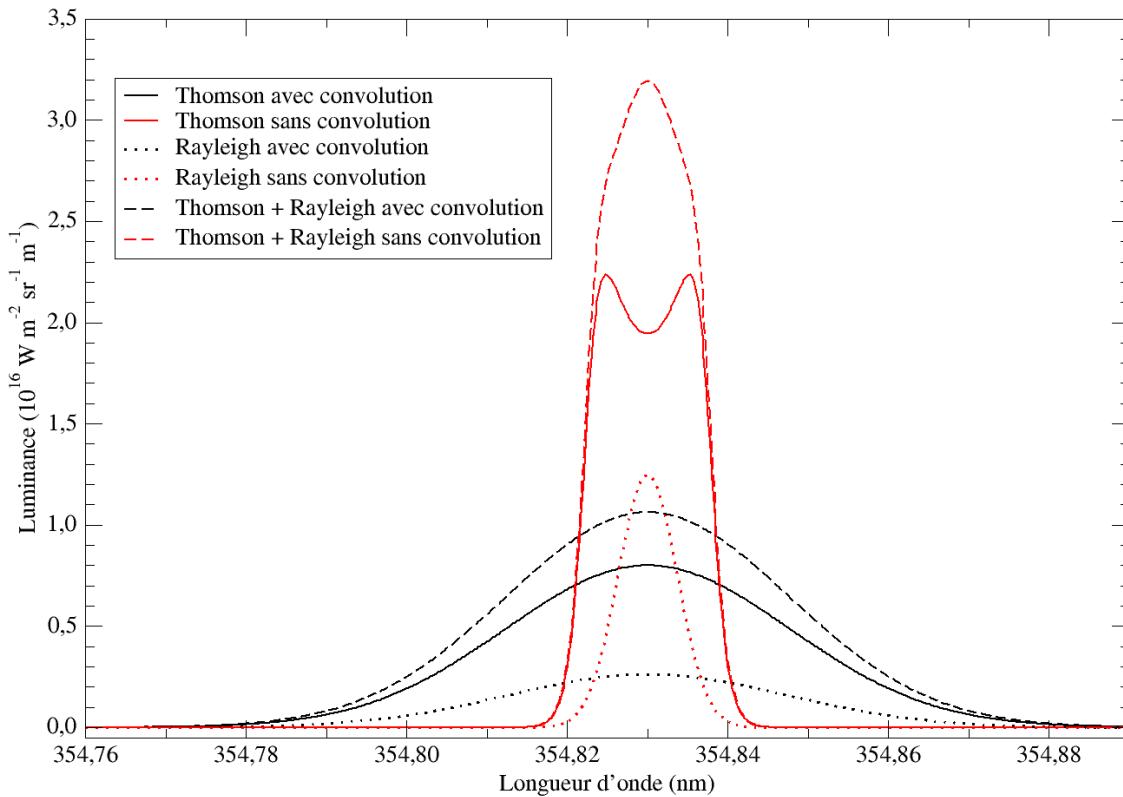


FIGURE 4.3.8 – Spectres de diffusion Rayleigh et Thomson convolus ou non par la fonction d'appareil ( $\delta\lambda_{app} = 0,04 \text{ nm}$ ) obtenus dans les conditions suivantes :  $T_e = T_A = 15500 \text{ K}$ ,  $n_e = n_Z = 1,5 \cdot 10^{25} \text{ m}^{-3}$ ,  $\delta = X = 300 \mu\text{m}$ ,  $\varphi_s = \varphi_{las}^{max} = 2 \cdot 10^{13} \text{ W m}^{-2}$  en supposant l'ion  $\text{Al}^+$  majoritaire. On peut constater que le spectre global est surtout dû à la diffusion Thomson.

la section efficace de diffusion Rayleigh est insuffisante pour produire un spectre plus intense que celui dû à la diffusion Thomson. On pouvait penser a priori que choisir la troisième harmonique du laser Nd :YAG pour réaliser les expériences de diffusion pouvait être handicapant : on constate que tel n'est pas le cas. Si l'ion majoritaire est plutôt  $\text{Al}^{2+}$ , le spectre Rayleigh est alors 8 fois moins intense que celui apparaissant sur la figure 4.3.8 en raison de la division par deux portant sur la polarisabilité électronique de  $\text{Al}^{2+}$  et de la division par deux de la densité en ions par rapport à la densité électronique. Dans ces conditions, la contribution de la part de la diffusion Rayleigh est totalement négligeable dans le spectre obtenu et la mesure des paramètres électroniques est alors possible conformément à l'étude menée dans la section précédente. Dans ces conditions, l'identification de la nature de l'ion majoritaire apparaît cruciale.

La figure 4.3.8 montre également le spectre complet obtenu lorsque diffusions Rayleigh et Thomson se superposent si l'ion majoritaire est  $\text{Al}^+$ . Dans ce cas, l'absorption de rayonnement à  $\lambda_s$  étant supposée négligeable, le milieu étant supposé homogène et la diffusion multiple inexiste, la luminance totale est la somme des luminances dues à chaque type de diffusion. On observe alors que l'élargissement à mi-hauteur du spectre de diffusion est très voisin de la largeur à mi-hauteur de la fonction d'appareil et le spectre est très proche de celui obtenu en négligeant la diffusion Rayleigh. Le calcul de l'intensité de la diffusion mène à :

- $470 \text{ kW m}^{-2} \text{ sr}^{-1}$  lorsque diffusions Rayleigh et Thomson sont prises en compte,

- $357 \text{ kW m}^{-2} \text{ sr}^{-1}$  lorsque seule la diffusion Thomson est prise en compte dans le cadre de la figure 4.3.8. En définitive, supposer que la diffusion Thomson est seule responsable du spectre observé revient à surestimer la densité électronique obtenue d'environ 30 % indépendamment de la fonction  $F_{app}$  que nous avons analysée dans la section précédente. Finalement, on obtient l'ordre de grandeur de la densité électronique en supposant que le spectre de diffusion résulte uniquement de la diffusion Thomson.

Dans le cas où l'ion majoritaire est  $\text{Al}^{2+}$ , le signal de diffusion n'est dû qu'à la diffusion Thomson, la contribution de la diffusion Rayleigh étant négligeable.

### 4.3.4 Résultats

Les calculs préliminaires présentés dans la section précédente constituent une excellente base pour l'étude par diffusion Thomson à l'aide du dispositif de la figure 4.3.1 des paramètres électroniques du plasma. Les ordres de grandeur considérés notamment pour la densité de flux  $\varphi_s$  du laser de sonde mènent à des niveaux de luminance et d'intensité compatibles avec une observation des spectres de diffusion dans des conditions satisfaisantes.

En dépit de ces conditions plutôt favorables et malgré un nombre important d'essais menés, nous n'avons pas réussi jusqu'à présent à observer la diffusion Thomson du rayonnement de sonde par les électrons du plasma. L'expérience est en effet très difficile à réaliser. Ces difficultés tiennent principalement aux dimensions caractéristiques mises en jeu et au type de diagnostic choisi. Ces difficultés ainsi que les solutions technologiques adoptées pour s'en affranchir sont les suivantes :

- **taille relative plasma sondé / faisceau de sonde**

Le plasma présente une extension spatiale très faible pour  $t \in [0; 65] \text{ ns}$ . C'est sur cet intervalle de temps que nous souhaitons réaliser l'expérience afin d'accéder à l'évolution de  $n_e$  et de  $T_e$  pendant la création du plasma et peu après afin de vérifier la cohérence des résultats obtenus avec ceux mis en évidence dans les sections précédentes. La largeur du plasma de l'ordre de  $X = 300 \mu\text{m}$  et son épaisseur de l'ordre de  $Z = 150 \mu\text{m}$  n'autorisent aucun défaut dans le positionnement relatif faisceau laser de sonde / plasma. Rappelons que le faisceau de sonde est focalisé par la lentille  $L_4$  (cf. figure 4.3.1). Selon sa distance focale, le diamètre du faisceau de sonde est ainsi réduit à quelques centaines de microns.

*Solution apportée* : le plasma est d'abord correctement positionné sur l'axe optique du spectromètre dont la largeur de la fente d'entrée est de  $20 \mu\text{m}$  en analysant le maximum de signal. A l'aide de vis micrométriques, le miroir  $M_2$  est positionné afin que le faisceau de sonde croise le faisceau de pompe. Des essais préalables sont menés à la pression atmosphérique : le claquage dans l'air quasiment au waist du faisceau permet d'au moins contrôler sa hauteur par rapport à l'échantillon. La chambre étant pompée à son niveau de pression nominale, la position du faisceau de sonde est modifiée en cours d'expérience à l'aide du même miroir à une vitesse suffisamment faible pour ne pas être géné par la cadence de tir du laser à 10 Hz.

- **taille relative plasma sondé / échantillon**

Le plasma produit présente une épaisseur extrêmement faible par rapport au diamètre de l'échantillon dont la taille caractéristique est de l'ordre du centimètre. Dans ces conditions, le moindre défaut d'alignement diaphragme la lumière émise par le plasma, donc sa potentielle diffusion du faisceau laser de sonde.

*Solution apportée* : un laser d'alignement He-Ne est utilisé pour figurer l'axe optique

du spectromètre. Trois fils calibrés de 50 µm sont positionnés sur l'échantillon au dessus desquels est placée une petite plaque plane. L'alignement de l'échantillon est ensuite réalisé en analysant les symétries de la figure de diffraction résultant du passage du faisceau He-Ne dans la fente d'Young ainsi formée. On contrôle enfin que l'échantillon tourne perpendiculairement à l'axe optique en vérifiant que la figure de diffraction n'est pas modifiée d'une position angulaire à une autre.

- **réflexions parasites**

L'interaction du laser de sonde avec le plasma est de faible intensité, de sorte que l'essentiel de l'impulsion est envoyé dans le fond de la chambre basse pression. Dans ces conditions, même un piège à lumière n'est pas suffisant pour éviter des réflexions parasites.

*Solution apportée :* des fenêtres de Brewster munies de hublots spéciaux adaptés à la longueur d'onde  $\lambda_s = 355$  nm sont installées sur la chambre basse pression. Ces fenêtres permettent de positionner ces hublots selon un angle  $i_B = \arctan n_{\lambda_s}$  par rapport à l'axe optique annulant la réflectivité de ces hublots à la longueur d'onde  $\lambda_s$ . L'indice de réfraction  $n_{\lambda_s}$  vaut environ 1,48 :  $i_B$  vaut donc 56°. Une fenêtre de ce type est en particulier positionnée sur l'axe du faisceau de sonde au-delà du plasma : le faisceau après interaction sort ainsi complètement de la chambre basse pression.

Ces dernières modifications ont été apportées très récemment à la chambre. Pour le moment, aucun test n'a encore été réalisé avec cette nouvelle configuration. Nous restons cependant extrêmement confiants sur l'issue favorable des essais que nous allons mener à très courte échéance. Les résultats seront discutés à la lumière de ceux mis en évidence dans les sections 4.1 et 4.2 et qui ont été comparés aux résultats des codes notamment dans la table 4.2.2.



## Conclusions et perspectives



Avant le commencement des travaux de thèse relatés dans ce mémoire, aucun modèle collisionnel-radiatif n'existait décrivant à la fois la création et la recombinaison d'un plasma produit à la suite de l'irradiation laser nanoseconde d'une cible d'aluminium placée dans le vide. Cet outil existe désormais. Il est basé sur une étude bibliographique approfondie ayant permis en particulier de préciser les conditions de changement de phase de l'échantillon et la nécessité de considérer dans un premier temps de faibles densités de flux laser afin d'éviter l'atteinte de conditions super-critiques. Ce modèle prend en compte une aérodynamique simplifiée supposée monodimensionnelle en raison des temps caractéristiques courts qu'il cherche à reproduire et des vitesses d'expansion à peu près soniques relatées par la littérature. Plus précisément :

- le modèle collisionnel-radiatif mis au point suppose le **déséquilibre thermochimique** du plasma, autrement dit le déséquilibre thermique entre espèces (électrons et lourds) chaque espèce étant à l'équilibre de translation, et le déséquilibre chimique entre états excités et d'un type d'espèce à l'autre,
- ce modèle intègre un **grand nombre de niveaux excités regroupés en niveaux fictifs** selon des critères énergétiques,
- les **processus élémentaires** pris en compte permettant de décrire les phases successives d'ionisation puis de recombinaison du plasma sont nombreux : collisions élastiques et inélastiques électrons-lourds, ionisation multiphotonique, Bremsstrahlung direct et inverse, Bremsstrahlung thermique, émission spontanée,
- le plasma formé constitue un système thermodynamique ouvert dont les **échanges de matière** sont pris en compte par l'intermédiaire de l'évaporation de la surface de l'échantillon,
- le modèle collisionnel-radiatif a été couplé de **deux** manières avec la surface : un premier **modèle** noté **A** et qualifié de *découplé* suppose une condition de température variable interpolée par une forme gaussienne à l'interface et un **second modèle** **B** qualifié de *couplé* où le calcul complet de la dynamique de l'échantillon et du plasma est réalisé. Ce dernier modèle n'est pas complètement opérationnel, mais a néanmoins permis de valider le couplage artificiel supposé par le modèle A.

Dans les conditions de référence choisies, ce modèle a mis en évidence une première phase d'ionisation correspondant globalement à la durée de l'impulsion (quelques nanosecondes) suivie d'une phase de recombinaison dont les durées caractéristiques sont nettement plus longues ( $10^{-6}$  à  $10^{-4}$  s). De manière quasi systématique, les échelles de temps caractéristiques du plasma respectent la relation d'ordre suivante :

$$\tau_{ee} \ll \tau_{AA} \ll \tau_{eA} \ll \tau_{exc}$$

où les temps caractéristiques précédents figurent respectivement ceux requis pour l'équilibre de translation entre électrons ( $\tau_{ee}$ ), entre lourds ( $\tau_{AA}$ ), entre électrons et lourds par collisions élastiques ( $\tau_{eA}$ ) et enfin pour obtenir l'équilibre d'excitation ( $\tau_{exc}$ ).

L'ion majoritaire produit à la suite de l'irradiation de l'échantillon est  $\text{Al}^+$ . Les valeurs maximales de la densité et de la température électroniques sont atteintes pendant l'impulsion laser et n'excèdent pas quelques  $10^{24} \text{ m}^{-3}$  (voire près de  $10^{25} \text{ m}^{-3}$  à haute température) et **8000 K** respectivement. Le degré d'ionisation du plasma reste ainsi assez faible.

L'analyse détaillée de la dynamique du plasma a mis en évidence les deux points suivants :

- **l'équilibre d'excitation est assez difficile à atteindre.** Aucun critère sur la densité électronique minimale nécessaire pour obtenir cet équilibre ne peut être

identifié. Ceci résulte des temps caractéristiques très courts de la dynamique de création du plasma ainsi que de sa relaxation qui empêche les niveaux d'excitation électronique d'être dans des conditions quasi stationnaires. Comme attendu, le critère de McWhirter que nous avons mentionné dans ce mémoire à quelques reprises est donc totalement invalidé dans nos conditions.

- **l'examen visuel des graphiques de Boltzmann pour statuer sur l'équilibre d'excitation est clairement insuffisant.** Le calcul des températures d'excitation de groupes de niveaux appartenant à des gammes énergétiques définies s'avère beaucoup plus précis. D'un groupe de niveaux à l'autre, les températures d'excitation ne sont pas nécessairement identiques : dans le graphique de Boltzmann, prolonger la distribution observée jusqu'au fondamental n'a donc aucune justification.

Contrairement à ce qu'affirment un assez grand nombre d'études antérieures, le Bremsstrahlung inverse joue un rôle plutôt modéré dans la dynamique du plasma dans les conditions choisies ; le rôle principal est joué par l'ionisation multiphotonique lors de la phase de création. Ce processus pilote systématiquement la création des électrons libres, leur chauffage étant également assuré par ce processus dans certaines conditions. Les autres processus radiatifs sont négligeables d'un point de vue énergétique.

Ceci n'a pas empêché ces processus de jouer un rôle capital dans les travaux développés dans ce mémoire en permettant une approche expérimentale de l'interaction laser/matière dans les conditions étudiées en vue d'une validation des modèles A et B. Grâce à ces processus, l'analyse expérimentale d'un plasma d'aluminium a en effet été réalisée peu de temps après l'impulsion. Cette analyse est basée sur :

- l'analyse de **raies particulières** pour lesquels les paramètres d'élargissement et de décalage Stark sont connus : les spectres synthétiques de ces raies ont été calculés et sont en excellent accord dans ce cas avec les spectres expérimentaux lorsque l'ion majoritaire est  $\text{Al}^+$  et lorsque la densité et la température électroniques sont de l'ordre de  **$10^{25} \text{ m}^{-3}$**  et  **$15000 \text{ K}$**  respectivement,
- l'analyse du **fond continu** confirme les résultats précédents : le calcul du spectre de Bremsstrahlung et de recombinaison radiative dans les mêmes conditions permet de très bien retrouver les spectres expérimentaux. Nous avons montré que la recombinaison radiative est beaucoup plus forte que le Bremsstrahlung.

Certaines raies observables dans le spectre pendant l'impulsion présentent une dynamique intéressante. Nous n'avons pas pu obtenir d'informations sur les paramètres électroniques pendant l'impulsion par analyse de ces raies en raison d'un manque de données élémentaires les concernant. Enfin, soulignons la grande cohérence des résultats obtenus par analyse des spectres de raies et continu.

Les différences observées avec les résultats des modèles nous ont poussé à doubler ceux obtenus expérimentalement d'une détermination directe par diffusion Thomson. Bien que la mesure n'ait pas encore été réalisée, les calculs développés concernant les spectres de diffusion ont mis en évidence la pertinence de l'approche adoptée : les niveaux de signaux attendus sont compatibles avec une observation dans des conditions satisfaisantes en raison en particulier de la très faible influence de la diffusion Rayleigh. Cette mesure permettra de statuer définitivement sur le relatif bon accord concernant la densité électronique et sur l'accord moins bon à propos de la température électronique.

Les travaux relatés dans ce mémoire ouvrent un champ très large en termes de perspectives. Concernant les aspects de modélisation, ces perspectives sont les suivantes :

- les difficultés rencontrées à propos de la mise au point du modèle couplé B doivent être surmontées. L'outil ainsi mis au point permettra l'étude de situations dans des

- conditions sous-critiques en rapport direct avec les expériences,
- pour des conditions super-critiques, il est nécessaire de mettre au point un modèle diphasique prenant en compte des gouttelettes d'aluminium dont l'interaction avec le plasma et l'impulsion laser peut permettre l'atteinte de densité et de température électroniques supérieures. Ce travail pourrait être réalisé en collaboration avec les spécialistes du multiphasique du laboratoire (T. Ménard et A. Berlemon),
  - ces modèles doivent s'affranchir autant que possible des hypothèses hydrogéoïdes : dans ce cadre, un vaste travail théorique doit être accompli concernant les processus élémentaires comme les collisions inélastiques par impact électronique, l'ionisation multiphotonique et la recombinaison radiative. Notre collaboration avec les équipes du LOMC au Havre (I. Schneider) et du LAC à Orsay (D. Benredjem) pourraient permettre des avancées significatives sur ce point,
  - le couplage avec la cible a été très simplifié. Un modèle intégrant une approche basée sur l'utilisation de l'équation de Boltzmann permettrait de modéliser d'une manière beaucoup plus fine l'évaporation de la surface de l'échantillon. Ce travail pourrait être réalisé en interne à partir des outils développés pour les situations de rentrée atmosphérique,
  - l'hypothèse de l'expansion monodimensionnelle du plasma cessant d'être valable aux temps longs, une description aérodynamique complète est nécessaire pour disposer d'un outil performant sur toutes les échelles de temps caractéristiques impliquées. Nous espérons pouvoir développer un tel outil avec les équipes du CEA à Saclay (D. L'hermite). L'intérêt de cet outil dépasserait de plus le cadre des plasmas produits dans le vide : les codes mis au point permettraient également le calcul des ondes de choc produites à la pression atmosphérique et de tenir compte du mélange avec N<sub>2</sub> et O<sub>2</sub>.

Au delà d'expériences complémentaires destinées à se placer davantage dans les conditions des modèles (le désaccord concernant la température électronique est peut-être imputable à une densité de flux trop forte forçant le changement de phase à se produire dans des conditions super-critiques), nous envisageons de :

- réaliser des mesures dans la gamme UV entre 200 nm et 400 nm, en particulier pour étudier la raie à 281,62 nm de Al<sup>+</sup> correspondant à la transition entre les niveaux d'énergie 11,822 eV et 7,421 eV et dont la probabilité d'émission spontanée est de 3,83.10<sup>8</sup> s<sup>-1</sup>. Cette étude permettrait d'estimer avec précision la densité de population du niveau haut de la transition et analyser sa dynamique. Ceci pourrait être également fait pour la raie à 263,23 nm (ayant une probabilité de transition de 2,42.10<sup>8</sup> s<sup>-1</sup> entre les niveaux à 15,308 eV et 10,598 eV),
- réaliser une étude systématique des groupes de raies dont les paramètres d'élargissement et de décalage Stark sont connus avec précision pouvant ainsi faire l'objet du calcul d'un spectre synthétique. Pour les raies dont ces données restent inconnues, nous comptons sur notre collaboration avec l'équipe de l'Université de Novi Sad en Serbie (Pr. Djurovic et Pr. Mijatovic).

Dans le chapitre 1.5, nous avons abordé le cas des plasmas créés par impulsion femtoseconde. Nous avons souligné l'intérêt que peut présenter ce type de situation où l'impulsion laser est temporellement décalée de la production du plasma. Les outils développés dans le cadre de ce mémoire peuvent être adaptés pour traiter ces cas de figure : un projet ANR est en préparation sur ces questions.



## **Annexes**



# Annexe A

## Niveaux d'énergie

Les niveaux regroupés de l'aluminium du cuivre et du magnésium sont listés dans cette annexe. Pour chaque espèce, nous avons indiqué :

- le numéro du niveau,
- son énergie exprimée en eV,
- son poids statistique  $g$ ,
- la valeur du nombre quantique azimutal  $l$  et
- la valeur du nombre quantique  $J$

La méthode utilisée pour effectuer ses divers regroupements est expliquée en détails dans la section [2.1.3](#) (page 52).

Le modèle développé au chapitre [2.1](#) ne tient compte que de l'aluminium sous les formes Al,  $\text{Al}^+$ ,  $\text{Al}^{2+}$  et  $\text{Al}^{3+}$  présentées dans la table [A.1](#).

Concernant le cuivre, les regroupements sont effectués pour Cu,  $\text{Cu}^+$ ,  $\text{Cu}^{2+}$ ,  $\text{Cu}^{3+}$  et  $\text{Cu}^{4+}$  (cf. table [A.3](#)).

Enfin, la table [A.3](#) regroupe les niveaux de Mg,  $\text{Mg}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  et  $\text{Mg}^{3+}$ .

n°	E (eV)	g	l	J	n°	E (eV)	g	l	J	n°	E (eV)	g	l	J
1	00,000	2	1	1/2	37	10,019	16	1	3/2	73	24,268	140	5	5
2	00,014	4	1	3/2	38	10,062	14	1	3/2	74	24,359	83	4	4
3	03,143	2	0	1/2	39	10,229	22	1	3/2	75	24,433	71	4	4
4	04,022	10	2	5/2	40	10,339	20	1	3/2	76	24,491	71	4	4
5	04,087	6	1	3/2	41	10,416	14	1	3/2	77	24,550	52	3	3
6	04,673	2	0	1/2	42	10,481	24	1	5/2	78	24,617	63	3	3
7	04,827	10	2	5/2	43	10,369	16	1	3/2	79	24,669	14	3	3
8	04,994	6	1	3/2	44	05,986	1	0	0	80	16,584	5	1	2
9	05,123	14	3	7/2	45	10,637	9	1	2	81	17,666	9	1	2
10	05,234	12	2	5/2	46	13,407	3	1	1	82	19,827	1	1	0
11	05,373	6	1	3/2	47	17,303	3	0	1	83	23,482	21	2	4
12	05,449	44	4	9/2	48	17,808	1	0	0	84	24,075	9	0	2
13	05,600	38	4	9/2	49	17,833	15	2	3	85	24,649	15	2	3
14	05,624	12	2	5/2	50	19,061	9	1	2	86	24,815	2	0	1/2
15	05,709	66	5	11/2	51	19,242	3	1	1	87	31,490	6	1	3/2
16	05,796	52	3	7/2	52	19,635	5	2	2	88	39,192	10	2	5/2
17	05,872	50	2	5/2	53	20,876	3	0	1	89	40,457	2	0	1/2
18	05,927	74	2	5/2	54	21,047	16	2	3	90	42,630	6	1	3/2
19	05,963	150	2	5/2	55	21,290	28	3	3	91	45,070	10	2	5/2
20	03,608	12	1	5/2	56	21,458	5	2	2	92	45,596	14	3	7/2
21	06,417	2	1	1/2	57	21,578	12	1	1	93	45,971	2	0	1/2
22	07,029	6	1	3/2	58	22,379	3	0	1	94	46,941	6	1	3/2
23	07,661	12	0	5/2	59	22,454	16	2	3	95	48,233	10	2	5/2
24	08,388	10	2	5/2	60	22,538	28	3	3	96	48,360	32	4	9/2
25	08,662	6	1	3/2	61	22,619	41	4	4	97	48,556	2	0	1/2
26	08,731	8	1	3/2	62	22,723	12	1	1	98	49,071	6	1	3/2
27	08,772	6	1	3/2	63	23,177	40	3	4	99	49,782	10	2	3/2
28	08,852	30	2	7/2	64	23,283	48	4	4	100	49,860	54	5	11/2
29	08,956	12	2	5/2	65	23,350	12	1	1	101	49,974	2	0	1/2
30	09,055	16	2	7/2	66	23,633	19	2	3	102	50,279	6	1	3/2
31	09,296	6	0	5/2	67	23,691	51	4	4	103	50,757	64	5	11/2
32	09,489	10	2	5/2	68	23,746	30	3	4	104	50,836	2	0	1/2
33	09,636	16	1	3/2	69	23,926	31	2	2	105	51,343	64	5	11/2
34	09,733	24	2	7/2	70	23,966	113	5	5	106	51,750	54	5	11/2
35	09,763	2	1	1/2	71	24,111	19	2	3	107	53,262	1	1	0
36	09,941	10	2	5/2	72	24,141	125	5	5					

TABLE A.1 – Niveaux d'énergie de l'aluminium considérés dans le modèle. Les traits pleins séparent les espèces : Al de 1 à 43, Al<sup>+</sup> de 44 à 85, Al<sup>2+</sup> de 86 à 106 et Al<sup>2+</sup> le n° 107. Les traits tiretés délimitent les configurations de cœur : 3s<sup>2</sup> de 1 à 19, 3s3p(3P) de 20 à 42, 3s3p(1P) le n° 43, 3s de 44 à 79, 3p de 80 à 85, 2p<sup>6</sup> de 86 à 106 et 2p<sup>5</sup> le n° 107.

n°	E (eV)	g	l	J	n°	E (eV)	g	l	J	n°	E (eV)	g	l	J
1	00,000	2	0	1/2	130	22,892	2	2	0	259	57,562	10	0	9/2
2	03,809	6	1	3/2	131	22,963	15	1	3	260	57,617	22	2	7/2
3	05,348	2	0	1/2	132	23,033	8	1	2	261	57,676	60	2	11/2
4	06,123	6	1	3/2	133	24,297	12	0	3	262	57,722	10	2	9/2
5	06,192	10	2	5/2	134	24,432	9	1	4	263	57,805	20	0	7/2
6	06,552	2	0	1/2	135	24,579	63	3	3	264	57,895	42	2	11/2
7	06,780	6	1	3/2	136	24,613	32	3	4	265	57,933	26	2	9/2
8	06,870	24	3	7/2	137	24,700	56	2	4	266	58,016	22	2	7/2
9	07,026	2	0	1/2	138	24,788	1	2	0	267	58,068	30	2	9/2
10	07,119	2	1	1/2	139	24,893	10	1	3	268	58,244	6	2	5/2
11	07,179	28	3	7/2	140	24,946	34	1	2	269	58,348	4	2	3/2
12	07,262	2	0	1/2	141	24,992	31	1	4	270	59,955	156	4	15/2
13	07,348	16	2	5/2	142	25,193	4	1	1	271	60,149	10	0	9/2
14	07,395	2	0	1/2	143	25,247	16	1	3	272	57,337	98	3	11/2
15	07,447	16	2	5/2	144	25,299	5	1	2	273	60,183	88	4	13/2
16	07,513	22	3	5/2	145	25,610	3	2	1	274	57,488	70	3	9/2
17	07,572	28	2	5/2	146	25,684	12	0	3	275	60,334	56	4	11/2
18	07,630	18	1	3/2	147	25,834	195	4	6	276	37,686	6	0	5/2
19	07,673	40	1	3/2	148	25,889	56	2	4	277	37,786	4	0	3/2
20	07,706	256	1	3/2	149	25,964	1	2	0	278	45,139	6	1	5/2
21	01,389	6	0	5/2	150	26,017	29	1	2	279	45,256	14	1	7/2
22	01,642	4	0	3/2	151	26,046	7	1	3	280	45,347	6	1	5/2
23	04,838	6	1	5/2	152	26,143	39	2	3	281	45,402	4	1	3/2
24	04,974	4	1	3/2	153	26,225	1	2	0	282	54,067	24	2	7/2
25	05,084	20	1	9/2	154	26,418	12	0	3	283	54,213	24	2	9/2
26	05,153	6	1	5/2	155	26,515	251	4	6	284	54,263	10	2	5/2
27	05,244	4	1	3/2	156	26,594	1	2	0	285	54,330	2	2	1/2
28	05,406	14	1	7/2	157	26,789	40	2	3	286	56,342	10	1	5/2
29	05,516	10	1	5/2	158	26,853	12	0	3	287	56,417	16	1	7/2
30	05,574	10	1	7/2	159	26,910	205	3	5	288	56,474	4	1	3/2
31	05,686	6	1	3/2	160	26,974	1	2	0	289	59,122	60	3	9/2
32	05,725	4	1	3/2	161	27,131	12	0	3	290	59,592	10	0	5/2
33	05,777	6	1	5/2	162	27,183	14	2	4	291	59,657	8	2	7/2
34	06,947	8	1	7/2	163	24,852	56	3	4	292	59,700	22	2	9/2
35	07,009	10	1	5/2	164	25,941	8	0	2	293	59,771	6	2	5/2
36	07,213	8	1	5/2	165	26,086	128	4	5	294	61,963	66	4	11/2
37	07,277	4	1	3/2	166	26,674	8	0	2	295	37,993	12	0	5/2
38	07,737	8	0	7/2	167	26,758	128	4	5	296	38,613	4	0	3/2
39	07,805	6	0	5/2	168	27,109	8	0	2	297	38,698	2	0	1/2
40	07,883	4	0	3/2	169	27,160	83	3	5	298	44,950	10	1	5/2
41	08,013	8	0	5/2	170	16,368	9	0	4	299	45,010	2	1	1/2
42	08,091	4	0	3/2	171	16,595	7	0	3	300	45,701	20	1	7/2
43	08,730	32	1	7/2	172	16,743	5	0	2	301	45,897	6	1	5/2
44	08,794	32	2	9/2	173	18,313	5	0	2	302	45,981	4	1	3/2
40	07,883	4	0	3/2	169	27,160	83	3	5	298	44,950	10	1	5/2
41	08,013	8	0	5/2	170	16,368	9	0	4	299	45,010	2	1	1/2

42	08,091	4	0	3/2	171	16,595	7	0	3	300	45,701	20	1	7/2
43	08,730	32	1	7/2	172	16,743	5	0	2	301	45,897	6	1	5/2
44	08,794	32	2	9/2	173	18,313	5	0	2	302	45,981	4	1	3/2
45	08,827	50	2	7/2	174	18,693	8	0	2	303	46,041	4	1	3/2
46	08,887	14	1	7/2	175	18,751	1	0	0	304	46,205	2	1	1/2
47	08,929	58	2	7/2	176	19,574	9	0	4	305	46,342	10	1	7/2
48	09,018	2	1	1/2	177	21,109	9	1	4	306	46,451	6	1	5/2
49	09,077	28	2	5/2	178	21,310	7	1	3	307	54,397	8	2	7/2
50	09,174	8	0	7/2	179	21,409	5	1	2	308	54,445	24	2	5/2
51	09,214	6	0	5/2	180	21,443	11	1	5	309	54,584	4	0	3/2
52	09,314	10	0	5/2	181	21,512	12	1	4	310	54,649	20	2	9/2
53	09,453	6	0	3/2	182	21,597	7	1	3	311	54,686	16	2	5/2
54	09,544	72	2	9/2	183	21,663	16	1	5	312	54,787	14	2	7/2
55	09,583	12	3	3/2	184	21,774	9	1	4	313	54,831	16	2	5/2
56	09,647	50	2	7/2	185	21,860	7	1	3	314	54,903	2	2	1/2
57	09,715	14	0	7/2	186	21,920	5	1	2	315	56,705	12	1	5/2
58	09,796	32	2	5/2	187	21,954	3	1	1	316	56,839	18	1	7/2
59	09,827	10	0	5/2	188	22,042	20	1	5	317	56,885	4	1	3/2
60	09,880	50	2	11/2	189	22,172	14	1	3	318	56,961	10	1	5/2
61	09,959	10	0	7/2	190	22,248	5	1	2	319	57,036	4	1	3/2
62	09,984	48	2	7/2	191	22,315	9	1	4	320	59,715	24	3	9/2
63	10,059	10	3	3/2	192	22,371	10	1	3	321	59,572	26	3	11/2
64	10,119	2	1	1/2	193	22,480	14	1	4	322	60,015	14	2	7/2
65	10,170	12	3	3/2	194	22,738	7	1	3	323	60,122	18	2	9/2
66	10,252	22	3	3/2	195	22,850	5	1	2	324	59,613	32	3	7/2
67	10,327	24	1	3/2	196	24,354	11	1	5	325	39,057	18	0	9/2
68	10,374	28	1	3/2	197	24,562	16	1	4	326	46,187	10	1	9/2
69	10,404	14	1	3/2	198	24,643	7	1	3	327	46,330	16	1	11/2
70	09,624	6	3	3/2	199	24,707	12	1	3	328	47,078	18	1	9/2
71	09,971	6	3	3/2	200	24,827	12	1	4	329	55,351	44	2	13/2
72	10,182	6	3	3/2	201	25,051	12	1	3	330	55,527	14	2	7/2
73	10,279	6	3	3/2	202	23,658	15	1	3	331	55,687	40	2	9/2
74	10,344	8	3	3/2	203	23,710	22	1	4	332	55,765	6	2	5/2
75	10,390	8	3	3/2	204	23,814	3	1	1	333	55,854	4	2	3/2
76	10,433	16	3	3/2	205	23,892	5	1	2	334	57,649	36	1	11/2
77	10,470	16	3	3/2	206	26,355	5	1	2	335	57,877	18	1	9/2
78	10,506	12	1	1/2	207	23,262	15	1	3	336	60,410	38	3	15/2
79	09,839	4	3	3/2	208	23,982	24	1	4	337	60,488	66	3	11/2
80	10,122	2	1	1/2	209	24,330	12	1	3	338	60,936	36	2	13/2
81	10,151	8	3	3/2	210	24,409	8	1	2	339	61,009	14	2	7/2
82	10,320	4	3	3/2	211	24,492	4	1	1	340	61,077	40	2	9/2
83	10,419	4	3	3/2	212	24,582	5	1	2	341	61,141	10	2	5/2
84	10,485	6	3	3/2	213	24,738	3	1	1	342	63,242	34	4	17/2
85	10,531	6	3	3/2	214	24,700	20	1	5	343	43,252	2	0	1/2
86	10,586	18	3	3/2	215	24,792	5	1	2	344	50,696	2	1	1/2
87	10,638	22	1	1/2	216	28,019	6	2	5/2	345	50,857	4	1	3/2

88	08,325	6	0	5/2	217	28,276	4	2	3/2	346	48,620	10	0	9/2
89	08,427	4	0	3/2	218	35,558	10	0	9/2	347	48,816	8	0	7/2
90	09,225	22	1	7/2	219	35,714	8	0	7/2	348	48,955	6	0	5/2
91	09,307	18	2	7/2	220	35,848	6	0	5/2	349	49,048	4	0	3/2
92	09,351	40	2	5/2	221	35,940	4	0	3/2	350	51,340	10	0	9/2
93	09,714	6	0	5/2	222	36,328	8	0	7/2	351	51,526	8	0	7/2
94	09,742	4	0	3/2	223	36,569	6	0	5/2	352	52,323	10	0	9/2
95	10,036	4	1	3/2	224	42,756	8	1	7/2	353	54,513	14	0	7/2
96	10,087	26	2	5/2	225	42,969	6	1	5/2	354	55,691	22	1	11/2
97	10,392	4	1	3/2	226	43,063	10	1	9/2	355	55,738	8	1	7/2
98	10,431	2	1	1/2	227	43,113	16	1	11/2	356	55,816	16	1	9/2
99	10,583	6	1	3/2	228	43,211	10	1	7/2	357	55,945	4	1	3/2
100	10,692	6	1	3/2	229	43,332	16	1	9/2	358	56,030	8	1	7/2
101	10,761	6	1	3/2	230	43,454	18	1	9/2	359	56,146	6	1	5/2
102	10,809	6	1	3/2	231	43,582	10	1	5/2	360	56,225	4	1	3/2
103	07,726	1	2	0	232	43,653	8	1	7/2	361	56,283	2	1	1/2
104	10,445	7	0	3	233	43,747	14	1	7/2	362	56,906	6	1	5/2
105	10,559	5	0	5	234	43,961	10	1	5/2	363	57,112	4	1	3/2
106	10,701	3	0	3	235	52,002	18	0	9/2	364	58,544	10	1	9/2
107	10,982	5	0	5	236	52,075	26	2	11/2	365	58,705	12	1	11/2
108	15,961	5	1	2	237	52,113	14	2	13/2	366	58,760	28	1	9/2
109	16,147	3	1	1	238	52,169	16	2	11/2	367	58,812	10	1	9/2
110	16,212	7	1	3	239	52,224	24	2	9/2	368	58,922	22	1	5/2
111	16,249	10	1	4	240	52,279	38	2	11/2	369	59,051	16	1	7/2
112	16,389	5	1	2	241	52,332	4	2	3/2	370	59,094	8	1	7/2
113	16,509	7	1	3	242	52,410	32	2	9/2	371	59,146	6	1	5/2
114	16,590	5	1	2	243	52,468	38	2	11/2	372	59,255	6	1	5/2
115	16,643	7	1	3	244	52,517	8	2	7/2	373	59,317	6	1	5/2
116	16,809	8	1	2	245	52,566	18	2	5/2	374	59,400	4	1	3/2
117	16,851	3	1	1	246	52,666	18	2	9/2	375	59,475	2	1	1/2
118	21,135	12	0	3	247	52,967	6	2	5/2	376	59,529	4	1	3/2
119	21,397	8	0	2	248	53,031	4	2	3/2	377	57,726	10	1	9/2
120	21,924	3	2	1	249	54,282	8	1	7/2	378	58,176	8	1	7/2
121	22,061	28	2	5	250	54,363	22	1	11/2	379	58,346	6	1	5/2
122	22,144	28	2	3	251	54,441	24	1	9/2	380	58,412	12	1	11/2
123	22,180	1	2	0	252	54,594	12	1	7/2	381	58,574	10	1	9/2
124	22,261	3	2	1	253	54,635	22	1	5/2	382	58,478	8	1	7/2
125	22,337	19	2	4	254	54,680	10	1	7/2	383	58,582	10	1	9/2
126	22,406	17	2	2	255	54,727	6	1	5/2	384	58,702	8	1	7/2
127	22,616	5	1	2	256	54,792	12	1	7/2	385	58,802	6	1	5/2
128	22,703	24	1	4	257	54,864	10	1	5/2	386	58,878	4	1	3/2
129	22,793	7	1	3	258	57,111	126	3	13/2	387	64,486	9	2	4

TABLE A.2 – Niveaux d'énergie du cuivre jusqu'au fondamental de Cu<sup>3+</sup>. Les traits pleins séparent les espèces, les traits tiretés délimitent les configurations de cœur.

n°	E (eV)	g	l	J	n°	E (eV)	g	l	J	n°	E (eV)	g	l	J
1	00,000	1	0	0	58	07,646	2	0	1/2	115	81,876	5	1	2
2	02,714	9	1	2	59	12,076	6	1	3/2	116	81,993	3	1	1
3	04,346	3	1	1	60	16,301	2	0	1/2	117	82,082	9	1	2
4	05,108	3	0	1	61	16,510	10	2	5/2	118	84,180	1	1	0
5	05,394	1	0	0	62	17,644	6	1	3/2	119	88,438	4	2	1
6	05,753	5	2	2	63	19,151	2	0	1/2	120	88,513	5	2	2
7	05,941	24	2	3	64	19,215	10	2	5/2	121	88,602	16	2	4
8	06,118	3	1	1	65	19,276	14	3	7/2	122	88,749	12	2	3
9	06,431	3	0	1	66	19,730	6	1	3/2	123	88,914	3	2	1
10	06,516	1	0	0	67	20,464	12	2	5/2	124	89,008	17	2	2
11	06,588	5	2	2	68	20,503	32	4	9/2	125	89,156	3	2	1
12	06,722	24	2	3	69	20,742	6	1	3/2	126	90,355	5	0	2
13	06,779	31	3	3	70	21,165	66	5	11/2	127	90,443	3	0	1
14	06,939	4	0	1	71	21,310	6	1	3/2	128	92,111	3	1	1
15	06,981	5	2	2	72	21,567	66	5	11/2	129	92,336	7	1	3
16	07,087	80	4	4	73	21,660	6	1	3/2	130	92,378	5	1	2
17	07,187	9	2	2	74	21,829	66	5	11/2	131	92,463	8	1	2
18	07,257	91	4	4	75	21,892	6	1	3/2	132	92,646	1	1	0
19	07,339	100	4	4	76	22,012	72	5	11/2	133	94,803	4	2	1
20	07,427	93	4	4	77	22,136	64	5	11/2	134	94,862	21	2	4
21	07,488	109	3	3	78	22,231	18	4	9/2	135	94,94	12	2	3
22	07,541	116	3	3	79	57,561	4	0	3/2	136	95,021	3	2	1
23	07,584	194	3	3	80	57,799	2	0	1/2	137	95,147	40	3	5
24	07,631	118	1	1	81	60,830	4	1	3/2	138	95,174	16	3	4
25	07,173	9	1	2	82	61,466	8	1	7/2	139	95,697	8	0	2
26	08,465	1	1	0	83	61,534	6	1	5/2	140	97,737	3	2	1
27	09,539	3	0	1	84	61,603	4	1	3/2	141	97,847	3	2	1
28	09,753	3	0	1	85	61,658	2	1	1/2	142	97,922	128	4	5
29	10,005	5	2	2	86	61,898	6	1	5/2	143	98,221	3	0	1
30	10,356	15	2	3	87	61,972	4	1	3/2	144	99,379	3	2	1
31	10,653	3	2	1	88	62,142	6	1	5/2	145	100,298	3	2	1
32	10,890	6	0	1	89	62,366	4	1	3/2	146	100,895	3	2	1
33	11,255	3	2	1	90	64,656	4	1	3/2	147	101,302	3	2	1
34	11,375	6	0	1	91	65,290	2	1	1/2	148	90,630	1	0	0
35	11,549	3	2	1	92	68,052	6	0	5/2	149	90,715	3	0	1
36	11,605	6	0	1	93	68,324	16	2	9/2	150	92,645	3	1	1
37	11,733	9	0	1	94	68,584	6	0	3/2	151	92,698	8	1	2
38	11,819	9	0	1	95	68,740	4	2	3/2	152	93,367	1	1	0
39	11,894	9	2	1	96	68,869	2	2	1/2	153	95,167	5	3	2
40	11,944	9	0	1	97	68,943	4	0	3/2	154	95,180	12	2	3

41	14,179	3	1	1	98	69,024	2	0	1/2	155	95,270	3	2	1
42	15,243	3	1	1	99	66,847	2	1	1/2	156	95,434	28	3	3
43	15,613	3	1	1	100	66,943	4	1	3/2	157	95,977	4	0	1
44	15,835	3	1	1	101	67,577	6	1	5/2	158	98,101	3	2	1
45	54,800	3	0	1	102	68,008	8	1	7/2	159	98,199	64	4	4
46	55,492	6	2	1	103	68,223	6	1	5/2	160	98,485	3	0	1
47	56,278	3	0	1	104	69,853	2	1	1/2	161	99,639	3	2	1
48	56,354	6	2	1	105	70,355	4	1	3/2	162	100,562	3	2	1
49	56,803	9	2	1	106	22,682	1	1	0	163	101,162	3	2	1
50	57,080	3	2	1	107	75,455	5	0	2	164	120,692	3	1	1
51	57,216	6	2	1	108	75,607	3	0	1	165	131,082	3	1	1
52	55,065	3	0	1	109	75,729	1	0	0	166	135,282	3	1	1
53	55,839	3	2	1	110	76,185	3	0	1	167	137,382	3	1	1
54	56,574	6	2	1	111	80,630	3	1	1	168	138,582	3	1	1
55	57,066	9	2	1	112	81,457	7	1	3	169	139,282	3	1	1
56	57,324	6	2	1	113	81,532	5	1	2	170	102,825	4	1	3/2
57	57,567	6	2	1	114	81,637	3	1	1					

TABLE A.3 – Niveaux d'énergie du magnésium jusqu'au fondamental de Mg<sup>3+</sup>. Les traits pleins séparent les espèces, les traits tiretés délimitent les configurations de cœur.



## Annexe B

### Probabilités d'émission spontanée

i	j	$A_{ji}^*$	i	j	$A_{ji}^*$	i	j	$A_{ji}^*$
5	6	$5,6925000.10^{-5}$	20	21	$4,7328000.10^4$	60	62	$6,0203687.10^5$
5	7	$3,8287500.10^8$	20	28	$5,4085200.10^5$	60	63	$4,6358752.10^4$
5	8	$1,6396200.10^8$	20	36	$3,7376800.10^5$	60	64	$1,3401165.10^4$
5	10	$1,0137500.10^8$	20	40	$4,7118600.10^5$	60	69	$2,8606667.10^4$
5	11	$6,7689000.10^7$	24	27	$6,7432750.10^8$	60	74	$5,3676667.10^5$
5	14	$1,7064292.10^8$	24	32	$1,3876327.10^9$	60	80	$6,6487500.10^4$
5	16	$4,0654091.10^7$	24	33	$1,0138600.10^9$	61	62	$1,3533333.10^5$
5	18	$1,0269625.10^8$	24	35	$8,7966667.10^7$	61	63	$2,7682737.10^5$
5	19	$1,2502879.10^7$	26	28	$1,3157500.10^7$	61	64	$7,0766160.10^4$
5	20	$1,9695173.10^7$	26	36	$3,0432000.10^7$	61	71	$9,4211000.10^5$
5	21	$6,3891600.10^6$	26	40	$2,2485000.10^7$	61	79	$6,0256000.10^5$
5	22	$2,6753446.10^6$	28	31	$1,5902500.10^6$	61	83	$7,9814000.10^5$
5	23	$6,5362800.10^5$	28	37	$7,1325000.10^4$	62	63	$1,3488115.10^5$
5	25	$4,4650000.10^9$	31	36	$1,8820000.10^7$	62	64	$6,4375012.10^4$
5	26	$1,3775000.10^9$	31	40	$2,6243000.10^6$	62	71	$5,2930000.10^5$
5	31	$3,2156667.10^8$	36	37	$1,4748750.10^5$	62	79	$3,5161000.10^5$
5	37	$5,4618750.10^6$	37	40	$3,2203000.10^6$	62	83	$4,5388000.10^5$
6	7	$7,5750000.10^8$	48	49	$5,6925000.10^{-5}$	63	64	$4,7328000.10^4$
6	8	$3,1379400.10^8$	48	50	$3,8287500.10^8$	63	71	$5,4085200.10^5$
6	10	$2,0095000.10^8$	48	51	$1,6396200.10^8$	63	79	$3,7376800.10^5$
6	11	$1,3099540.10^8$	48	53	$1,0137500.10^8$	63	83	$4,7118600.10^5$
6	14	$3,2904083.10^8$	48	54	$6,7689000.10^7$	67	70	$6,7432750.10^8$
6	16	$7,8495795.10^7$	48	57	$1,7064292.10^8$	67	75	$1,3876327.10^9$
6	18	$1,9799692.10^8$	48	59	$4,0654091.10^7$	67	76	$1,0138600.10^9$
6	19	$2,4125273.10^7$	48	61	$1,0269625.10^8$	67	78	$8,7966667.10^7$
6	20	$3,8038115.10^7$	48	62	$1,2502879.10^7$	69	71	$1,3157500.10^7$
6	21	$1,2300190.10^7$	48	63	$1,9695173.10^7$	69	79	$3,0432000.10^7$

6	22	5,1470189.10 <sup>6</sup>	48	64	6,3891600.10 <sup>6</sup>	69	83	2,2485000.10 <sup>7</sup>
6	23	1,2576252.10 <sup>6</sup>	48	65	2,6753446.10 <sup>6</sup>	71	74	1,5902500.10 <sup>6</sup>
6	25	8,8925000.10 <sup>9</sup>	48	66	6,5362800.10 <sup>5</sup>	71	80	7,1325000.10 <sup>4</sup>
6	26	5,4590000.10 <sup>9</sup>	48	68	4,4650000.10 <sup>9</sup>	74	79	1,8820000.10 <sup>7</sup>
6	31	6,0650000.10 <sup>8</sup>	48	69	1,3775000.10 <sup>9</sup>	74	83	2,6243000.10 <sup>6</sup>
6	37	2,7168750.10 <sup>7</sup>	48	74	3,2156667.10 <sup>8</sup>	79	80	1,4748750.10 <sup>5</sup>
7	9	1,3650500.10 <sup>8</sup>	48	80	5,4618750.10 <sup>6</sup>	80	83	3,2203000.10 <sup>6</sup>
7	12	1,0179667.10 <sup>7</sup>	49	50	7,5750000.10 <sup>8</sup>	90	91	5,6925000.10 <sup>-5</sup>
7	15	2,5041833.10 <sup>6</sup>	49	51	3,1379400.10 <sup>8</sup>	90	92	3,8287500.10 <sup>8</sup>
7	17	1,2395526.10 <sup>5</sup>	49	53	2,0095000.10 <sup>8</sup>	90	93	1,6396200.10 <sup>8</sup>
8	9	1,6534167.10 <sup>4</sup>	49	54	1,3099540.10 <sup>8</sup>	90	95	1,0137500.10 <sup>8</sup>
8	12	3,0817533.10 <sup>5</sup>	49	57	3,2904083.10 <sup>8</sup>	90	96	6,7689000.10 <sup>7</sup>
8	13	1,0598379.10 <sup>8</sup>	49	59	7,8495795.10 <sup>7</sup>	90	99	1,7064292.10 <sup>8</sup>
8	15	5,0643167.10 <sup>4</sup>	49	61	1,9799692.10 <sup>8</sup>	90	101	4,0654091.10 <sup>7</sup>
8	16	1,6776007.10 <sup>7</sup>	49	62	2,4125273.10 <sup>7</sup>	90	103	1,0269625.10 <sup>8</sup>
8	17	1,1331260.10 <sup>7</sup>	49	63	3,8038115.10 <sup>7</sup>	90	104	1,2502879.10 <sup>7</sup>
8	19	2,3400955.10 <sup>6</sup>	49	64	1,2300190.10 <sup>7</sup>	90	105	1,9695173.10 <sup>7</sup>
8	20	3,3701317.10 <sup>6</sup>	49	65	5,1470189.10 <sup>6</sup>	90	106	6,3891600.10 <sup>6</sup>
8	21	1,0507592.10 <sup>6</sup>	49	66	1,2576252.10 <sup>6</sup>	90	107	2,6753446.10 <sup>6</sup>
8	28	1,4906000.10 <sup>7</sup>	49	68	8,8925000.10 <sup>9</sup>	90	108	6,5362800.10 <sup>5</sup>
8	36	9,4462000.10 <sup>6</sup>	49	69	5,4590000.10 <sup>9</sup>	90	110	4,4650000.10 <sup>9</sup>
8	40	2,0319600.10 <sup>7</sup>	49	74	6,0650000.10 <sup>8</sup>	91	92	7,5750000.10 <sup>8</sup>
9	10	5,6192500.10 <sup>7</sup>	49	80	2,7168750.10 <sup>7</sup>	91	93	3,1379400.10 <sup>8</sup>
9	11	7,0594700.10 <sup>7</sup>	50	52	1,3650500.10 <sup>8</sup>	91	95	2,0095000.10 <sup>8</sup>
9	14	6,6153883.10 <sup>6</sup>	50	55	1,0179667.10 <sup>7</sup>	91	96	1,3099540.10 <sup>8</sup>
9	16	8,5399386.10 <sup>5</sup>	50	58	2,5041833.10 <sup>6</sup>	91	99	3,2904083.10 <sup>8</sup>
9	18	2,5399858.10 <sup>6</sup>	50	60	1,2395526.10 <sup>5</sup>	91	101	7,8495795.10 <sup>7</sup>
9	19	4,0607258.10 <sup>5</sup>	51	52	1,6534167.10 <sup>4</sup>	91	103	1,9799692.10 <sup>8</sup>
9	20	7,3666846.10 <sup>5</sup>	51	55	3,0817533.10 <sup>5</sup>	91	104	2,4125273.10 <sup>7</sup>
9	21	1,8989200.10 <sup>5</sup>	51	56	1,0598379.10 <sup>8</sup>	91	105	3,8038115.10 <sup>7</sup>
9	26	1,5715000.10 <sup>6</sup>	51	58	5,0643167.10 <sup>4</sup>	91	106	1,2300190.10 <sup>7</sup>
9	31	9,8473333.10 <sup>6</sup>	51	59	1,6776007.10 <sup>7</sup>	91	107	5,1470189.10 <sup>6</sup>
9	37	1,9783125.10 <sup>6</sup>	51	60	1,1331260.10 <sup>7</sup>	91	108	1,2576252.10 <sup>6</sup>
10	12	1,1965333.10 <sup>7</sup>	51	62	2,3400955.10 <sup>6</sup>	91	110	8,8925000.10 <sup>9</sup>
10	15	1,6246000.10 <sup>6</sup>	51	63	3,3701317.10 <sup>6</sup>	92	94	1,3650500.10 <sup>8</sup>
10	17	9,0039474.10 <sup>4</sup>	51	64	1,0507592.10 <sup>6</sup>	92	97	1,0179667.10 <sup>7</sup>
11	12	2,0135750.10 <sup>6</sup>	51	71	1,4906000.10 <sup>7</sup>	92	100	2,5041833.10 <sup>6</sup>
11	13	1,0096129.10 <sup>7</sup>	51	79	9,4462000.10 <sup>6</sup>	92	102	1,2395526.10 <sup>5</sup>
11	15	4,4740550.10 <sup>5</sup>	51	83	2,0319600.10 <sup>7</sup>	93	94	1,6534167.10 <sup>4</sup>
11	16	4,7375886.10 <sup>4</sup>	52	53	5,6192500.10 <sup>7</sup>	93	97	3,0817533.10 <sup>5</sup>

11	17	$2,8043232.10^5$	52	54	$7,0594700.10^7$	93	98	$1,0598379.10^8$
11	19	$1,4309106.10^5$	52	57	$6,6153883.10^6$	93	100	$5,0643167.10^4$
11	20	$2,7608325.10^5$	52	59	$8,5399386.10^5$	93	101	$1,6776007.10^7$
11	21	$1,0090262.10^5$	52	61	$2,5399858.10^6$	93	102	$1,1331260.10^7$
11	28	$9,1588000.10^6$	52	62	$4,0607258.10^5$	93	104	$2,3400955.10^6$
11	36	$5,0410000.10^6$	52	63	$7,3666846.10^5$	93	105	$3,3701317.10^6$
11	40	$8,4979000.10^6$	52	64	$1,8989200.10^5$	93	106	$1,0507592.10^6$
12	14	$9,7374917.10^6$	52	69	$1,5715000.10^6$	94	95	$5,6192500.10^7$
12	16	$2,4423798.10^5$	52	74	$9,8473333.10^6$	94	96	$7,0594700.10^7$
12	18	$5,6824700.10^5$	52	80	$1,9783125.10^6$	94	99	$6,6153883.10^6$
12	19	$9,7171970.10^4$	53	55	$1,1965333.10^7$	94	101	$8,5399386.10^5$
12	20	$1,9291288.10^5$	53	58	$1,6246000.10^6$	94	103	$2,5399858.10^6$
12	21	$5,6553060.10^4$	53	60	$9,0039474.10^4$	94	104	$4,0607258.10^5$
12	26	$2,2135000.10^5$	54	55	$2,0135750.10^6$	94	105	$7,3666846.10^5$
12	31	$2,3875000.10^6$	54	56	$1,0096129.10^7$	94	106	$1,8989200.10^5$
12	37	$3,5156250.10^5$	54	58	$4,4740550.10^5$	95	97	$1,1965333.10^7$
13	14	$2,3592333.10^5$	54	59	$4,7375886.10^4$	95	100	$1,6246000.10^6$
13	16	$3,7277772.10^6$	54	60	$2,8043232.10^5$	95	102	$9,0039474.10^4$
13	17	$1,4517632.10^6$	54	62	$1,4309106.10^5$	96	97	$2,0135750.10^6$
13	18	$3,9569008.10^2$	54	63	$2,7608325.10^5$	96	98	$1,0096129.10^7$
13	19	$3,9891377.10^5$	54	64	$1,0090262.10^5$	96	100	$4,4740550.10^5$
13	20	$1,0249296.10^3$	54	71	$9,1588000.10^6$	96	101	$4,7375886.10^4$
13	21	$4,4096000.10^2$	54	79	$5,0410000.10^6$	96	102	$2,8043232.10^5$
14	15	$5,5711300.10^6$	54	83	$8,4979000.10^6$	96	104	$1,4309106.10^5$
14	16	$2,2422682.10^6$	55	57	$9,7374917.10^6$	96	105	$2,7608325.10^5$
14	17	$7,3214368.10^5$	55	59	$2,4423798.10^5$	96	106	$1,0090262.10^5$
14	19	$9,8335848.10^4$	55	61	$5,6824700.10^5$	97	99	$9,7374917.10^6$
14	20	$9,7849288.10^4$	55	62	$9,7171970.10^4$	97	101	$2,4423798.10^5$
14	21	$1,6310472.10^4$	55	63	$1,9291288.10^5$	97	103	$5,6824700.10^5$
14	28	$4,1649000.10^6$	55	64	$5,6553060.10^4$	97	104	$9,7171970.10^4$
14	36	$2,3748700.10^6$	55	69	$2,2135000.10^5$	97	105	$1,9291288.10^5$
14	40	$3,5533000.10^6$	55	74	$2,3875000.10^6$	97	106	$5,6553060.10^4$
15	16	$3,1855909.10^5$	55	80	$3,5156250.10^5$	98	99	$2,3592333.10^5$
15	18	$2,9794122.10^5$	56	57	$2,3592333.10^5$	98	101	$3,7277772.10^6$
15	19	$3,7041364.10^4$	56	59	$3,7277772.10^6$	98	102	$1,4517632.10^6$
15	20	$7,4982885.10^4$	56	60	$1,4517632.10^6$	98	103	$3,9569008.10^2$
15	21	$2,2568420.10^4$	56	61	$3,9569008.10^2$	98	104	$3,9891377.10^5$
15	26	$6,6823333.10^4$	56	62	$3,9891377.10^5$	98	105	$1,0249296.10^3$
15	31	$1,0091167.10^6$	56	63	$1,0249296.10^3$	98	106	$4,4096000.10^2$
15	37	$1,3230000.10^5$	56	64	$4,4096000.10^2$	99	100	$5,5711300.10^6$

16	17	$2,4216150.10^6$	57	58	$5,5711300.10^6$	99	101	$2,2422682.10^6$
16	18	$2,1253083.10^3$	57	59	$2,2422682.10^6$	99	102	$7,3214368.10^5$
16	19	$9,3608681.10^5$	57	60	$7,3214368.10^5$	99	104	$9,8335848.10^4$
16	20	$2,6741001.10^5$	57	62	$9,8335848.10^4$	99	105	$9,7849288.10^4$
16	21	$6,7648129.10^4$	57	63	$9,7849288.10^4$	99	106	$1,6310472.10^4$
16	28	$1,8761900.10^6$	57	64	$1,6310472.10^4$	100	101	$3,1855909.10^5$
16	36	$1,1425300.10^6$	57	71	$4,1649000.10^6$	100	103	$2,9794122.10^5$
16	40	$1,5844400.10^6$	57	79	$2,3748700.10^6$	100	104	$3,7041364.10^4$
17	18	$4,1011583.10^5$	57	83	$3,5533000.10^6$	100	105	$7,4982885.10^4$
17	19	$6,0203687.10^5$	58	59	$3,1855909.10^5$	100	106	$2,2568420.10^4$
17	20	$4,6358752.10^4$	58	61	$2,9794122.10^5$	101	102	$2,4216150.10^6$
17	21	$1,3401165.10^4$	58	62	$3,7041364.10^4$	101	103	$2,1253083.10^3$
17	26	$2,8606667.10^4$	58	63	$7,4982885.10^4$	101	104	$9,3608681.10^5$
17	31	$5,3676667.10^5$	58	64	$2,2568420.10^4$	101	105	$2,6741001.10^5$
17	37	$6,6487500.10^4$	58	69	$6,6823333.10^4$	101	106	$6,7648129.10^4$
18	19	$1,3533333.10^5$	58	74	$1,0091167.10^6$	102	103	$4,1011583.10^5$
18	20	$2,7682737.10^5$	58	80	$1,3230000.10^5$	102	104	$6,0203687.10^5$
18	21	$7,0766160.10^4$	59	60	$2,4216150.10^6$	102	105	$4,6358752.10^4$
18	28	$9,4211000.10^5$	59	61	$2,1253083.10^3$	102	106	$1,3401165.10^4$
18	36	$6,0256000.10^5$	59	62	$9,3608681.10^5$	103	104	$1,3533333.10^5$
18	40	$7,9814000.10^5$	59	63	$2,6741001.10^5$	103	105	$2,7682737.10^5$
19	20	$1,3488115.10^5$	59	64	$6,7648129.10^4$	103	106	$7,0766160.10^4$
19	21	$6,4375012.10^4$	59	71	$1,8761900.10^6$	104	105	$1,3488115.10^5$
19	28	$5,2930000.10^5$	59	79	$1,1425300.10^6$	104	106	$6,4375012.10^4$
19	36	$3,5161000.10^5$	59	83	$1,5844400.10^6$	105	106	$4,7328000.10^4$
19	40	$4,5388000.10^5$	60	61	$4,1011583.10^5$			

TABLE B.1 – Probabilités d'émission spontanée équivalentes de l'aluminium. Le détail du calcul est donné dans la sous-section 2.1.4.e page 64.

## Annexe C

### Élargissements Stark

$\lambda$ (nm)		2500	3000	5000	9670	10000	12000	13200	13600	20000	Ref.
220,5		50,90		62,50		71,50				75,90	[88]
221,0		50,90		62,50		71,50				75,90	[88]
225,8		13,40		18,50		25,50				32,00	[88]
226,4		14,50		19,70		25,20				29,70	[88]
226,4		13,40		18,50		25,50				32,00	[88]
226,9		14,50		19,70		25,20				29,70	[88]
236,7		3,91		5,84		8,32				10,80	[88]
237,2		6,02		7,92		10,70				13,80	[88]
237,2			4,27	4,90		5,90				7,10	[236]
237,3		3,91		5,84		8,32				10,80	[88]
237,8		6,02		7,92		10,70				13,80	[88]
256,8		2,74		3,49		4,48				5,27	[88]
257,5		2,74		3,49		4,48				5,27	[88]
260,1			2,24	2,50		2,79				3,06	[236]
265,3		2,27		2,88		3,80				4,95	[88]
265,9			2,36	2,64		2,93				3,10	[236]
266,1		2,27		2,88		3,80				4,95	[88]
308,2		2,75		2,88		2,81				2,64	[88]
308,2					0,65	0,65	1,99				[127]
309,1			1,96	2,09		2,16				2,10	[127]
309,2		2,75		2,88		2,81				2,64	[88]
309,3					2,45	2,45	1,99				[127]
394,4		0,99		1,20		1,52				1,98	[88]
394,4					1,64	0,53	0,53	2,11	1,56		[127]
395,3			1,05	1,20		1,40				1,55	[236]
396,1		0,99		1,20		1,52				1,98	[88]
396,2					2,21	0,55	0,55	2,11	1,45		[127]

510,7		121,50	133,50	152	176,5	[236]
555,7	49,30		69,30	96,50	123,00	[88]
555,9		51,50	57,50	67,00	80,00	[236]
669,5	18,20		28,60	42,30	56,40	[88]
669,8	18,20		28,60	42,30	56,40	[88]
670,0		21,75	24,50	29,35	36,20	[236]
736,1	1120,00		1230,00	1230,00	1150,00	[88]
736,2	1120,00		1230,00	1230,00	1150,00	[88]
783,5	489,00		561,00	582,00	562,00	[88]
783,6	489,00		561,00	582,00	562,00	[88]
800,5		304,50	334,50	381,50	441,00	[236]
806,5	679,00		835,00	954,00	1010,00	[88]
807,5	679,00		835,00	954,00	1010,00	[88]
877,2	173,00		210,00	233,00	239,00	[88]
877,3	173,00		210,00	233,00	239,00	[88]
882,8	205,00		283,00	389,00	488,00	[88]
884,1	205,00		283,00	389,00	488,00	[88]
891,2	224,00		305,00	390,00	460,00	[88]
892,3	224,00		305,00	390,00	460,00	[88]
917,5		147,00	165,50	194,00	229,00	[236]
1076,8	80,60		121,00	172,00	223,00	[88]
1077,4		118,00	132,00	152,00	177,00	[236]
1078,6	80,60		121,00	172,00	223,00	[88]
1087,2	124,00		164,00	223,00	285,00	[88]
1089,1	124,00		164,00	223,00	285,00	[88]
1125,3	47,60		64,70	81,30	93,70	[88]
1125,5	47,60		64,70	81,30	93,70	[88]
1275,9		94,00	108,50	129,50	153,50	[236]
1312,3	65,60		71,40	74,50	77,30	[88]
1314,7		56,50	59,00	63,50	67,00	[236]
1315,0	65,60		71,40	74,50	77,30	[88]
1793,0		192,00	202,50	212,50	225,50	[236]
2111,7		271,00	286,00	300,00	320,00	[236]

TABLE C.1 – Demi élargissements à mi-hauteur  $\omega$  de Al (exprimé en pm) pour différentes longueurs d'onde à différentes températures. Ce paramètre est valable pour une densité électronique de  $10^{22} \text{ m}^{-3}$ . Il intervient dans l'équation 2.1.69 de la page 65.

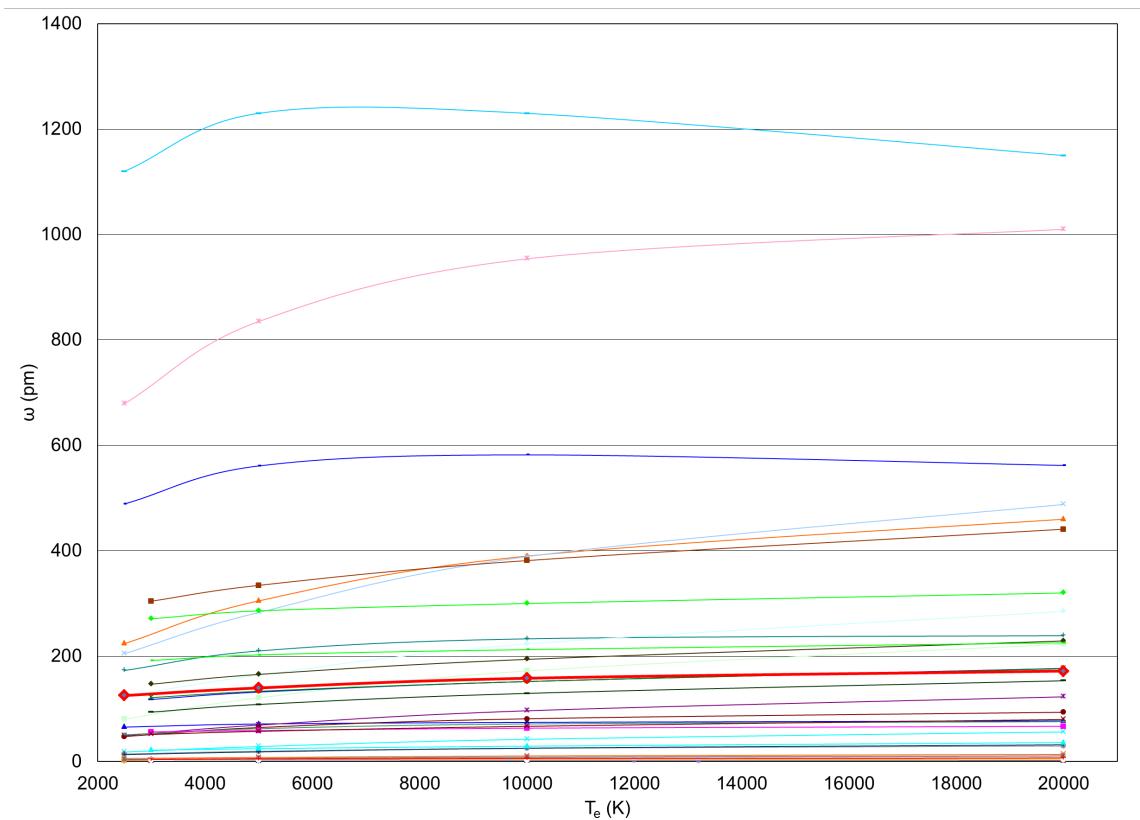


FIGURE C.1 – Demi-élargissement Stark  $\omega$  lorsque  $n_e = 10^{22} \text{ m}^{-3}$  en fonction de la température électronique. La courbe rouge correspond à la valeur moyenne linéaire qui est utilisée dans le modèle dans la sous-section 2.1.4.e.

$\lambda$ (nm)	$T_e$ (K)				
	2000	5000	10000	20000	Ref.
154,0	0,71	0,94	1,12	1,22	[88]
162,6	0,40	0,49	0,63	0,82	[88]
167,1	0,01	0,02	0,02	0,02	[88]
172,0	0,05	0,06	0,07	0,09	[88]
172,5	0,05	0,06	0,07	0,09	[88]
185,6	0,10	0,12	0,15	0,19	[88]
186,2	0,10	0,12	0,15	0,19	[88]
199,0	0,22	0,30	0,38	0,45	[88]
247,5	2,34	2,99	3,53	3,85	[88]
253,3	1,60	2,36	3,53	4,91	[88]
253,3	1,60	2,36	3,53	4,91	[88]
263,2	1,12	1,49	1,68	1,82	[88]
263,8	5,12	6,71	7,92	8,68	[88]
266,9	0,03	0,03	0,03	0,04	[88]
281,6	0,29	0,35	0,43	0,56	[88]
290,2	0,76	0,92	1,15	1,48	[88]
290,4	0,76	0,92	1,15	1,48	[88]
299,4	23,70	27,20	28,80	28,60	[88]
299,8	23,70	27,20	28,80	28,60	[88]
302,2	7,49	9,49	12,50	16,20	[88]
302,6	7,49	9,49	12,50	16,20	[88]
304,1	37,80	49,00	59,80	66,40	[88]
307,4	215,00	179,00	145,00	118,00	[88]
308,5	288,00	243,00	202,00	165,00	[88]
313,5	12,20	15,50	20,30	25,10	[88]
327,6	4,09	5,23	6,18	6,75	[88]
331,3	0,74	1,17	1,85	2,70	[88]
331,5	0,74	1,17	1,85	2,70	[88]
335,1	16,40	21,50	26,30	29,30	[88]
342,8	84,10	82,70	77,70	69,90	[88]
358,6	1,45	1,93	2,36	2,77	[88]
358,7	1,45	1,93	2,36	2,77	[88]
364,9	11,80	14,70	16,90	18,10	[88]
365,4	11,80	14,70	16,90	18,10	[88]
370,3	113,00	106,00	96,60	86,40	[88]
373,1	4,75	5,92	7,69	10,10	[88]
373,8	4,75	5,92	7,69	10,10	[88]

386,6	6,99	8,77	11,40	14,60	[88]
390,0	0,85	1,14	1,44	1,71	[88]
402,6	11,20	14,60	18,50	21,80	[88]
423,7	30,20	33,60	34,10	32,10	[88]
433,2	29,30	41,40	58,50	76,30	[88]
462,9	87,60	114,00	139,00	154,00	[88]
466,3		7,92	6,15	4,91	[5]
499,8	17,00	24,40	35,30	47,40	[88]
508,5	65,80	89,10	116,00	142,00	[88]
510,0	65,80	89,10	116,00	142,00	[88]
537,1	19,60	28,20	40,80	54,80	[88]
559,3	53,40	58,90	60,80	59,90	[88]
583,3	47,90	62,50	78,80	91,50	[88]
585,3	81,30	94,40	103,00	106,00	[88]
586,7	81,30	94,40	103,00	106,00	[88]
622,6	6,86	8,79	11,00	12,70	[88]
624,3	6,86	8,79	11,00	12,70	[88]
633,5	14,70	18,80	21,90	23,20	[88]
669,6	11,20	16,50	24,70	34,30	[88]
669,9	11,20	16,50	24,70	34,30	[88]
681,6	5,42	6,61	8,43	11,00	[88]
683,7	5,42	6,61	8,43	11,00	[88]
691,9	7,20	8,86	11,40	14,80	[88]
704,2	0,62	1,04	1,74	2,68	[88]
706,3	0,62	1,04	1,74	2,68	[88]
747,1	9,80	12,00	13,60	14,70	[88]
835,4	51,40	67,40	79,40	87,10	[88]
836,3	51,40	67,40	79,40	87,10	[88]
864,0	6,38	8,24	10,50	12,30	[88]
1007,6	1,89	2,52	3,62	5,17	[88]
1010,8	1,89	2,52	3,62	5,17	[88]

TABLE C.2 – Demi-élargissements à mi-hauteur  $\omega$  de  $\text{Al}^+$  (exprimé en pm) pour différentes longueurs d'onde à différentes températures. Ce paramètre est valable pour une densité électronique de  $10^{22} \text{ m}^{-3}$ . Il intervient dans l'équation 2.1.69 de la page 65.

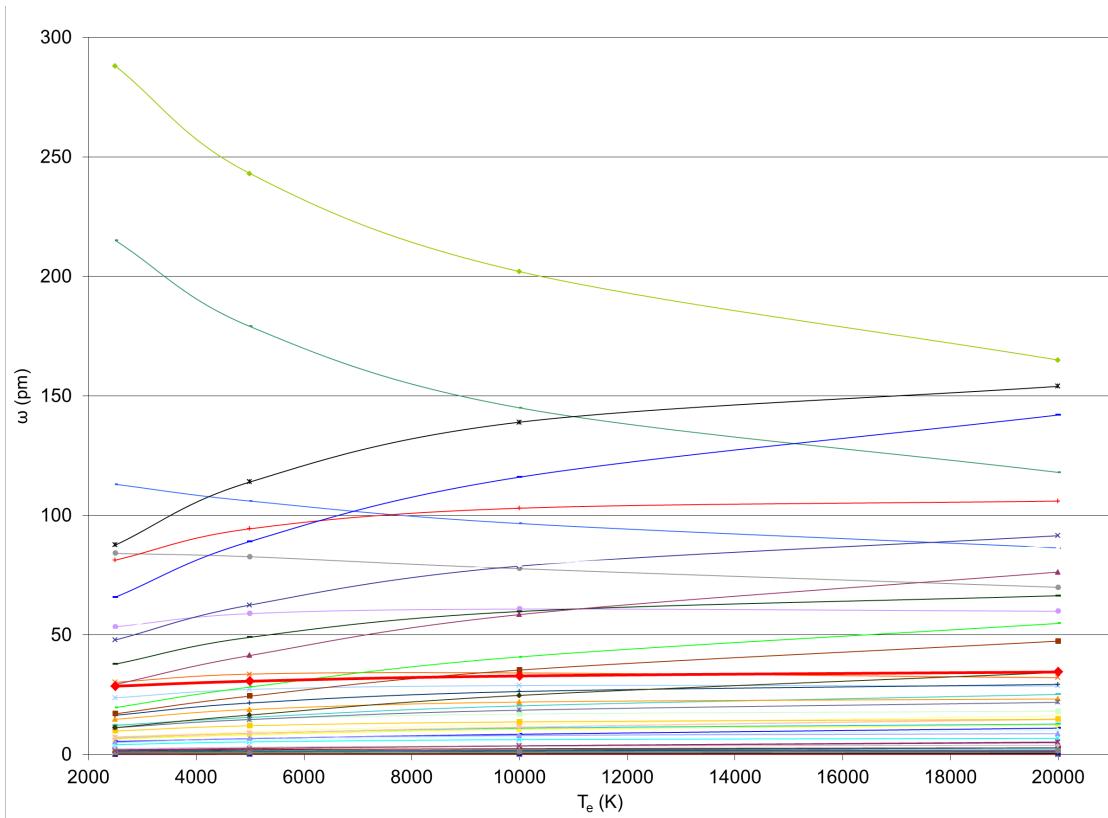


FIGURE C.2 – Demi-élargissement Stark  $\omega$  lorsque  $n_e = 10^{22} \text{ m}^{-3}$  en fonction de la température électronique. La courbe rouge correspond à la valeur moyenne linéaire qui est utilisée dans le modèle dans la sous-section 2.1.4.e.

$\lambda$ (nm)	$T_e$ (K)			Ref.
	10000	20000	50000	
56,0	0,21	0,17	0,14	[236]
74,1	0,77	0,66	0,56	[236]
85,6	0,41	0,32	0,26	[236]
135,3	3,90	3,26	2,59	[236]
160,0	1,69	1,35	1,13	[236]
191,2	2,71	2,16	1,83	[236]
221,3	7,20	6,17	5,24	[236]
371,1	9,07	7,10	5,99	[236]
415,1	41,60	34,70	27,80	[236]
470,3	36,90	31,10	25,90	[236]
789,2	59,20	48,20	40,60	[236]
959,7	150,00	129,00	113,00	[236]
1278,7	144,00	119,00	108,00	[236]

TABLE C.3 – Demi-élargissements à mi-hauteur  $\omega$  de  $\text{Al}^{2+}$  (exprimé en pm) pour différentes longueurs d’onde à différentes températures. Ce paramètre est valable pour une densité électronique de  $10^{22} \text{ m}^{-3}$ . Il intervient à l’équation 2.1.69 de la page 65.

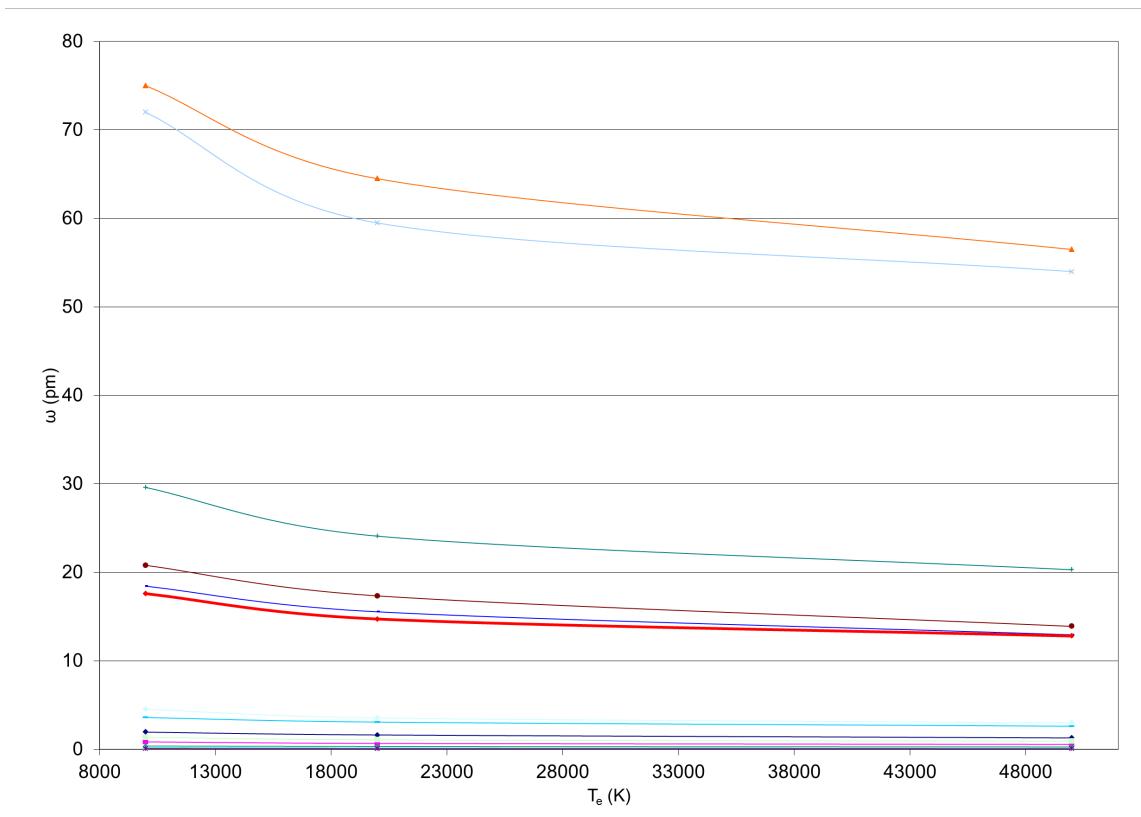


FIGURE C.3 – Demi-élargissement Stark  $\omega$  lorsque  $n_e = 10^{22} \text{ m}^{-3}$  en fonction de la température électronique. La courbe rouge correspond à la valeur moyenne linéaire qui est utilisée dans le modèle dans la sous-section 2.1.4.e.

## Annexe D

# Données thermodynamiques

Cette annexe regroupe les valeurs des données thermophysiques utilisées dans le modèle B. Une discussion autour de ces valeurs est menée dans la sous-section 2.2.2.b à la page 82.

La table D.2 récapitule les données trouvées dans la littérature ainsi que des données calculées à partir des données de la littérature.

Dans la table D.4 la capacité thermique molaire à pression constante  $C_p$  est linéarisée pour que l'égalité  $a = \frac{k}{\rho c_p}$  soit vérifiée pour chaque température. De plus, nous avons modifié quelques valeurs initialement estimées par Touloukian pour que la pente de l'enthalpie volumique en fonction de la température soit positive quelle que soit la température.

Enfin la table D.6 regroupe les valeurs des propriétés thermophysiques qui sont utilisées dans notre modèle.

valeurs issues du site de la NASA [233]
valeurs calculées par l'intermédiaire des autres données
valeurs issues du rapport de Touloukian [227]
valeurs linéarisées sur l'intervalle considéré
valeurs de la fonction proposée par Alcock <i>et al.</i> pour le solide [4]
valeurs estimées par Touloukian [227]
valeurs de la fonction proposée par Alcock <i>et al.</i> pour le liquide [4]
valeurs que nous proposons [166]

TABLE D.1 – Légende de la table D.2.

T (K)	$C_p$ (J/mol/K)	$c_p$ (J/kg/K)	$k_T$ (W/m/K)	$a_T$ (m <sup>2</sup> /s)	$\rho$ (kg/m <sup>3</sup> )	$\mathbf{h}$ (J/m <sup>3</sup> )	$P_{vap}$ (Pa)
298,00	24,20	896,91	237,00	9,69.10 <sup>-5</sup>	2727,96	7,29.10 <sup>8</sup>	2,04.10 <sup>-46</sup>
300,00	24,23	898,17	237,00	9,68.10 <sup>-5</sup>	2725,93	7,35.10 <sup>8</sup>	4,95.10 <sup>-46</sup>
350,00	25,05	928,49	240,00	9,52.10 <sup>-5</sup>	2715,18	8,82.10 <sup>8</sup>	7,94.10 <sup>-38</sup>
400,00	25,73	953,76	240,00	9,36.10 <sup>-5</sup>	2688,41	1,03.10 <sup>9</sup>	1,12.10 <sup>-31</sup>
450,00	26,34	976,26	237,95	9,12.10 <sup>-5</sup>	2672,56	1,17.10 <sup>9</sup>	6,67.10 <sup>-27</sup>
500,00	26,91	997,35	236,00	8,88.10 <sup>-5</sup>	2664,72	1,33.10 <sup>9</sup>	4,38.10 <sup>-23</sup>
550,00	27,47	1018,07	233,95	8,63.10 <sup>-5</sup>	2664,34	1,49.10 <sup>9</sup>	5,78.10 <sup>-20</sup>
600,00	28,04	1039,38	231,00	8,37.10 <sup>-5</sup>	2655,30	1,66.10 <sup>9</sup>	2,29.10 <sup>-17</sup>
650,00	28,66	1062,24	227,58	8,11.10 <sup>-5</sup>	2643,42	1,83.10 <sup>9</sup>	3,59.10 <sup>-15</sup>
700,00	29,34	1087,56	225,00	7,84.10 <sup>-5</sup>	2638,84	2,01.10 <sup>9</sup>	2,73.10 <sup>-13</sup>
750,00	30,12	1116,24	220,90	7,60.10 <sup>-5</sup>	2603,91	2,18.10 <sup>9</sup>	1,16.10 <sup>-11</sup>
800,00	31,01	1149,12	218,00	7,36.10 <sup>-5</sup>	2577,59	2,37.10 <sup>9</sup>	3,06.10 <sup>-10</sup>
850,00	32,03	1187,11	213,90	7,14.10 <sup>-5</sup>	2523,63	2,55.10 <sup>9</sup>	5,50.10 <sup>-9</sup>
900,00	33,21	1230,88	210,00	6,92.10 <sup>-5</sup>	2465,46	2,73.10 <sup>9</sup>	7,15.10 <sup>-8</sup>
933,47	34,10	1263,98	208,00	6,80.10 <sup>-5</sup>	2420,00	2,86.10 <sup>9</sup>	3,41.10 <sup>-7</sup>
933,47	33,52	1242,16	178,68	5,98.10 <sup>-5</sup>	2405,38	3,03.10 <sup>9</sup>	3,44.10 <sup>-7</sup>
933,47	32,93	1220,35	149,35	5,16.10 <sup>-5</sup>	2371,76	3,17.10 <sup>9</sup>	3,48.10 <sup>-7</sup>
933,47	32,34	1198,54	120,03	4,34.10 <sup>-5</sup>	2307,43	3,27.10 <sup>9</sup>	3,52.10 <sup>-7</sup>
933,47	31,75	1176,73	90,70	3,52.10 <sup>-5</sup>	2189,72	3,27.10 <sup>9</sup>	3,55.10 <sup>-7</sup>
950,00	31,75	1176,73	91,28	3,55.10 <sup>-5</sup>	2185,22	3,31.10 <sup>9</sup>	7,13.10 <sup>-7</sup>
1000,00	31,75	1176,73	93,00	3,64.10 <sup>-5</sup>	2171,22	3,42.10 <sup>9</sup>	5,08.10 <sup>-6</sup>
1050,00	31,75	1176,73	94,71	3,72.10 <sup>-5</sup>	2163,54	3,53.10 <sup>9</sup>	3,01.10 <sup>-5</sup>
1100,00	31,75	1176,73	96,40	3,80.10 <sup>-5</sup>	2155,84	3,65.10 <sup>9</sup>	1,51.10 <sup>-4</sup>
1150,00	31,75	1176,73	97,90	3,88.10 <sup>-5</sup>	2147,07	3,76.10 <sup>9</sup>	6,61.10 <sup>-4</sup>
1200,00	31,75	1176,73	99,40	3,95.10 <sup>-5</sup>	2138,51	3,87.10 <sup>9</sup>	2,56.10 <sup>-3</sup>
1250,00	31,75	1176,73	100,49	4,03.10 <sup>-5</sup>	2121,74	3,96.10 <sup>9</sup>	8,88.10 <sup>-3</sup>
1300,00	31,75	1176,73	102,00	4,10.10 <sup>-5</sup>	2114,17	4,07.10 <sup>9</sup>	2,80.10 <sup>-2</sup>
1350,00	31,75	1176,73	103,37	4,17.10 <sup>-5</sup>	2106,52	4,18.10 <sup>9</sup>	8,11.10 <sup>-2</sup>
1400,00	31,75	1176,73	105,00	4,24.10 <sup>-5</sup>	2104,49	4,30.10 <sup>9</sup>	2,18.10 <sup>-1</sup>
1450,00	31,75	1176,73	106,37	4,30.10 <sup>-5</sup>	2102,12	4,42.10 <sup>9</sup>	5,46.10 <sup>-1</sup>
1500,00	31,75	1176,73	107,00	4,36.10 <sup>-5</sup>	2085,55	4,51.10 <sup>9</sup>	1,29.10 <sup>0</sup>
1550,00	31,75	1176,73	107,68	4,42.10 <sup>-5</sup>	2070,37	4,60.10 <sup>9</sup>	2,87.10 <sup>0</sup>
1600,00	31,75	1176,73	109,00	4,48.10 <sup>-5</sup>	2067,62	4,71.10 <sup>9</sup>	6,10.10 <sup>0</sup>
1650,00	31,75	1176,73	109,68	4,54.10 <sup>-5</sup>	2055,35	4,81.10 <sup>9</sup>	1,24.10 <sup>1</sup>
1700,00	31,75	1176,73	111,00	4,59.10 <sup>-5</sup>	2055,10	4,93.10 <sup>9</sup>	2,41.10 <sup>1</sup>
1750,00	31,75	1176,73	111,00	4,62.10 <sup>-5</sup>	2041,76	5,02.10 <sup>9</sup>	4,50.10 <sup>1</sup>
1800,00	31,75	1176,73	112,00	4,68.10 <sup>-5</sup>	2033,74	5,12.10 <sup>9</sup>	8,14.10 <sup>1</sup>
1850,00	31,75	1176,73	112,68	4,73.10 <sup>-5</sup>	2026,65	5,22.10 <sup>9</sup>	1,43.10 <sup>2</sup>
1900,00	31,75	1176,73	113,00	4,77.10 <sup>-5</sup>	2013,18	5,30.10 <sup>9</sup>	2,43.10 <sup>2</sup>
1950,00	31,75	1176,73	113,68	4,81.10 <sup>-5</sup>	2008,51	5,41.10 <sup>9</sup>	4,01.10 <sup>2</sup>
2000,00	31,75	1176,73	114,00	4,85.10 <sup>-5</sup>	1997,50	5,49.10 <sup>9</sup>	6,48.10 <sup>2</sup>

2050,00	31,75	1176,73	114,00	4,88.10 <sup>-5</sup>	1984,20	5,57.10 <sup>9</sup>	1,02.10 <sup>3</sup>
2100,00	31,75	1176,73	114,27	4,92.10 <sup>-5</sup>	1975,71	5,67.10 <sup>9</sup>	1,58.10 <sup>3</sup>
2150,00	31,75	1176,73	114,54	4,95.10 <sup>-5</sup>	1967,34	5,76.10 <sup>9</sup>	2,38.10 <sup>3</sup>
2200,00	31,75	1176,73	115,00	4,98.10 <sup>-5</sup>	1962,42	5,86.10 <sup>9</sup>	3,53.10 <sup>3</sup>
2250,00	31,75	1176,73	115,00	5,01.10 <sup>-5</sup>	1952,62	5,95.10 <sup>9</sup>	5,15.10 <sup>3</sup>
2300,00	31,75	1176,73	115,00	5,03.10 <sup>-5</sup>	1942,91	6,03.10 <sup>9</sup>	7,39.10 <sup>3</sup>
2350,00	31,75	1176,73	115,00	5,06.10 <sup>-5</sup>	1933,30	6,11.10 <sup>9</sup>	1,04.10 <sup>4</sup>
2400,00	31,75	1176,73	115,00	5,08.10 <sup>-5</sup>	1923,79	6,20.10 <sup>9</sup>	1,45.10 <sup>4</sup>
2450,00	31,75	1176,73	115,00	5,10.10 <sup>-5</sup>	1916,24	6,29.10 <sup>9</sup>	2,00.10 <sup>4</sup>
2500,00	31,75	1176,73	115,00	5,12.10 <sup>-5</sup>	1908,76	6,37.10 <sup>9</sup>	2,71.10 <sup>4</sup>
2550,00	31,75	1176,73	115,00	5,14.10 <sup>-5</sup>	1901,33	6,46.10 <sup>9</sup>	3,63.10 <sup>4</sup>
2600,00	31,75	1176,73	115,00	5,16.10 <sup>-5</sup>	1893,96	6,55.10 <sup>9</sup>	4,81.10 <sup>4</sup>
2650,00	31,75	1176,73	115,00	5,18.10 <sup>-5</sup>	1888,47	6,64.10 <sup>9</sup>	6,30.10 <sup>4</sup>
2700,00	31,75	1176,73	114,79	5,19.10 <sup>-5</sup>	1879,55	6,72.10 <sup>9</sup>	8,18.10 <sup>4</sup>
2750,00	31,75	1176,73	114,39	5,21.10 <sup>-5</sup>	1867,70	6,79.10 <sup>9</sup>	1,05.10 <sup>5</sup>
2800,00	31,75	1176,73	114,00	5,22.10 <sup>-5</sup>	1855,91	6,85.10 <sup>9</sup>	1,34.10 <sup>5</sup>
2850,00	31,75	1176,73	113,32	5,23.10 <sup>-5</sup>	1840,38	6,90.10 <sup>9</sup>	1,69.10 <sup>5</sup>
2900,00	31,75	1176,73	113,00	5,25.10 <sup>-5</sup>	1830,86	6,97.10 <sup>9</sup>	2,12.10 <sup>5</sup>
2950,00	31,75	1176,73	113,00	5,26.10 <sup>-5</sup>	1826,51	7,07.10 <sup>9</sup>	2,64.10 <sup>5</sup>
3000,00	31,75	1176,73	113,00	5,27.10 <sup>-5</sup>	1822,18	7,16.10 <sup>9</sup>	3,26.10 <sup>5</sup>
3050,00	31,75	1176,73	112,32	5,27.10 <sup>-5</sup>	1811,13	7,22.10 <sup>9</sup>	4,00.10 <sup>5</sup>
3100,00	31,75	1176,73	111,79	5,27.10 <sup>-5</sup>	1802,62	7,29.10 <sup>9</sup>	4,87.10 <sup>5</sup>
3150,00	31,75	1176,73	111,39	5,27.10 <sup>-5</sup>	1796,28	7,37.10 <sup>9</sup>	5,90.10 <sup>5</sup>
3200,00	31,75	1176,73	111,00	5,27.10 <sup>-5</sup>	1789,93	7,45.10 <sup>9</sup>	7,10.10 <sup>5</sup>
3250,00	31,75	1176,73	110,32	5,27.10 <sup>-5</sup>	1778,88	7,51.10 <sup>9</sup>	8,49.10 <sup>5</sup>
3300,00	31,75	1176,73	109,79	5,27.10 <sup>-5</sup>	1770,37	7,58.10 <sup>9</sup>	1,01.10 <sup>6</sup>
3350,00	31,75	1176,73	109,39	5,27.10 <sup>-5</sup>	1764,02	7,65.10 <sup>9</sup>	1,20.10 <sup>6</sup>
3400,00	31,75	1176,73	109,00	5,27.10 <sup>-5</sup>	1757,68	7,73.10 <sup>9</sup>	1,41.10 <sup>6</sup>
3450,00	31,75	1176,73	108,00	5,27.10 <sup>-5</sup>	1741,55	7,76.10 <sup>9</sup>	1,65.10 <sup>6</sup>
3500,00	31,75	1176,73	107,00	5,27.10 <sup>-5</sup>	1725,43	7,79.10 <sup>9</sup>	1,93.10 <sup>6</sup>
3550,00	31,75	1176,73	106,00	5,26.10 <sup>-5</sup>	1713,20	7,84.10 <sup>9</sup>	2,24.10 <sup>6</sup>
3600,00	31,75	1176,73	105,00	5,25.10 <sup>-5</sup>	1700,92	7,88.10 <sup>9</sup>	2,59.10 <sup>6</sup>
3650,00	31,75	1176,73	104,50	5,23.10 <sup>-5</sup>	1696,70	7,96.10 <sup>9</sup>	2,99.10 <sup>6</sup>
3700,00	31,75	1176,73	104,00	5,22.10 <sup>-5</sup>	1692,46	8,04.10 <sup>9</sup>	3,43.10 <sup>6</sup>
3750,00	31,75	1176,73	103,50	5,21.10 <sup>-5</sup>	1688,21	8,12.10 <sup>9</sup>	3,93.10 <sup>6</sup>
3800,00	31,75	1176,73	103,00	5,20.10 <sup>-5</sup>	1683,93	8,20.10 <sup>9</sup>	4,48.10 <sup>6</sup>
3850,00	31,75	1176,73	102,32	5,19.10 <sup>-5</sup>	1676,60	8,26.10 <sup>9</sup>	5,09.10 <sup>6</sup>
3900,00	31,75	1176,73	101,51	5,17.10 <sup>-5</sup>	1667,28	8,31.10 <sup>9</sup>	5,76.10 <sup>6</sup>
3950,00	31,75	1176,73	100,61	5,16.10 <sup>-5</sup>	1656,25	8,36.10 <sup>9</sup>	6,50.10 <sup>6</sup>
4000,00	31,75	1176,73	99,70	5,15.10 <sup>-5</sup>	1645,17	8,40.10 <sup>9</sup>	7,32.10 <sup>6</sup>
4050,00	31,75	1176,73	98,85	5,13.10 <sup>-5</sup>	1636,81	8,45.10 <sup>9</sup>	8,21.10 <sup>6</sup>
4100,00	31,75	1176,73	98,14	5,11.10 <sup>-5</sup>	1630,85	8,52.10 <sup>9</sup>	9,19.10 <sup>6</sup>
4150,00	31,75	1176,73	97,29	5,10.10 <sup>-5</sup>	1622,43	8,57.10 <sup>9</sup>	1,03.10 <sup>7</sup>
4200,00	31,75	1176,73	96,44	5,08.10 <sup>-5</sup>	1613,96	8,62.10 <sup>9</sup>	1,14.10 <sup>7</sup>
4250,00	31,75	1176,73	95,59	5,06.10 <sup>-5</sup>	1605,42	8,67.10 <sup>9</sup>	1,27.10 <sup>7</sup>
4300,00	31,75	1176,73	94,72	5,04.10 <sup>-5</sup>	1596,55	8,71.10 <sup>9</sup>	1,40.10 <sup>7</sup>

4350,00	31,75	1176,73	93,84	5,02.10 <sup>-5</sup>	1587,36	8,76.10 <sup>9</sup>	1,55.10 <sup>7</sup>
4400,00	31,75	1176,73	92,96	5,01.10 <sup>-5</sup>	1578,11	8,80.10 <sup>9</sup>	1,71.10 <sup>7</sup>
4450,00	31,75	1176,73	92,08	4,99.10 <sup>-5</sup>	1568,80	8,84.10 <sup>9</sup>	1,88.10 <sup>7</sup>
4500,00	31,75	1176,73	91,20	4,97.10 <sup>-5</sup>	1559,41	8,88.10 <sup>9</sup>	2,06.10 <sup>7</sup>
4550,00	31,75	1176,73	90,26	4,95.10 <sup>-5</sup>	1550,83	8,92.10 <sup>9</sup>	2,26.10 <sup>7</sup>
4600,00	31,75	1176,73	89,32	4,92.10 <sup>-5</sup>	1542,16	8,96.10 <sup>9</sup>	2,47.10 <sup>7</sup>
4650,00	31,75	1176,73	88,38	4,90.10 <sup>-5</sup>	1533,41	9,00.10 <sup>9</sup>	2,70.10 <sup>7</sup>
4700,00	31,75	1176,73	87,44	4,87.10 <sup>-5</sup>	1524,57	9,04.10 <sup>9</sup>	2,94.10 <sup>7</sup>
4750,00	31,75	1176,73	86,50	4,85.10 <sup>-5</sup>	1515,64	9,07.10 <sup>9</sup>	3,19.10 <sup>7</sup>
4800,00	31,75	1176,73	85,56	4,83.10 <sup>-5</sup>	1506,63	9,11.10 <sup>9</sup>	3,47.10 <sup>7</sup>
4850,00	31,75	1176,73	84,62	4,80.10 <sup>-5</sup>	1497,52	9,14.10 <sup>9</sup>	3,75.10 <sup>7</sup>
4900,00	31,75	1176,73	83,68	4,78.10 <sup>-5</sup>	1488,33	9,17.10 <sup>9</sup>	4,06.10 <sup>7</sup>
4950,00	31,75	1176,73	82,74	4,75.10 <sup>-5</sup>	1479,04	9,20.10 <sup>9</sup>	4,39.10 <sup>7</sup>
5000,00	31,75	1176,73	81,80	4,73.10 <sup>-5</sup>	1469,65	9,23.10 <sup>9</sup>	4,73.10 <sup>7</sup>
5050,00	31,75	1176,73	80,81	4,69.10 <sup>-5</sup>	1462,85	9,27.10 <sup>9</sup>	5,09.10 <sup>7</sup>
5100,00	31,75	1176,73	79,82	4,66.10 <sup>-5</sup>	1455,94	9,32.10 <sup>9</sup>	5,47.10 <sup>7</sup>
5150,00	31,75	1176,73	78,83	4,62.10 <sup>-5</sup>	1448,92	9,36.10 <sup>9</sup>	5,88.10 <sup>7</sup>
5200,00	31,75	1176,73	77,84	4,59.10 <sup>-5</sup>	1441,79	9,39.10 <sup>9</sup>	6,30.10 <sup>7</sup>
5250,00	31,75	1176,73	76,85	4,55.10 <sup>-5</sup>	1434,55	9,43.10 <sup>9</sup>	6,75.10 <sup>7</sup>
5300,00	31,75	1176,73	75,86	4,52.10 <sup>-5</sup>	1427,20	9,47.10 <sup>9</sup>	7,22.10 <sup>7</sup>
5350,00	31,75	1176,73	74,87	4,48.10 <sup>-5</sup>	1419,74	9,50.10 <sup>9</sup>	7,71.10 <sup>7</sup>
5400,00	31,75	1176,73	73,88	4,45.10 <sup>-5</sup>	1412,15	9,53.10 <sup>9</sup>	8,22.10 <sup>7</sup>
5450,00	31,75	1176,73	72,89	4,41.10 <sup>-5</sup>	1404,44	9,56.10 <sup>9</sup>	8,76.10 <sup>7</sup>
5500,00	31,75	1176,73	71,90	4,38.10 <sup>-5</sup>	1396,61	9,59.10 <sup>9</sup>	9,32.10 <sup>7</sup>
5550,00	31,75	1176,73	70,85	4,34.10 <sup>-5</sup>	1387,47	9,61.10 <sup>9</sup>	9,91.10 <sup>7</sup>
5600,00	31,75	1176,73	69,80	4,30.10 <sup>-5</sup>	1378,18	9,63.10 <sup>9</sup>	1,05.10 <sup>8</sup>
5650,00	31,75	1176,73	68,75	4,27.10 <sup>-5</sup>	1368,74	9,64.10 <sup>9</sup>	1,12.10 <sup>8</sup>
5700,00	31,75	1176,73	67,70	4,23.10 <sup>-5</sup>	1359,14	9,66.10 <sup>9</sup>	1,18.10 <sup>8</sup>
5750,00	31,75	1176,73	66,65	4,20.10 <sup>-5</sup>	1349,37	9,67.10 <sup>9</sup>	1,25.10 <sup>8</sup>
5800,00	31,75	1176,73	65,60	4,16.10 <sup>-5</sup>	1339,44	9,67.10 <sup>9</sup>	1,32.10 <sup>8</sup>
5850,00	31,75	1176,73	64,55	4,13.10 <sup>-5</sup>	1329,34	9,68.10 <sup>9</sup>	1,40.10 <sup>8</sup>
5900,00	31,75	1176,73	63,50	4,09.10 <sup>-5</sup>	1319,07	9,68.10 <sup>9</sup>	1,48.10 <sup>8</sup>
5950,00	31,75	1176,73	62,45	4,06.10 <sup>-5</sup>	1308,61	9,68.10 <sup>9</sup>	1,56.10 <sup>8</sup>
6000,00	31,75	1176,73	61,40	4,02.10 <sup>-5</sup>	1297,97	9,68.10 <sup>9</sup>	1,64.10 <sup>8</sup>
6050,00	31,75	1176,73	60,31	3,97.10 <sup>-5</sup>	1291,80	9,71.10 <sup>9</sup>	1,73.10 <sup>8</sup>
6100,00	31,75	1176,73	59,22	3,92.10 <sup>-5</sup>	1285,46	9,74.10 <sup>9</sup>	1,82.10 <sup>8</sup>
6150,00	31,75	1176,73	58,13	3,86.10 <sup>-5</sup>	1278,95	9,76.10 <sup>9</sup>	1,91.10 <sup>8</sup>
6200,00	31,75	1176,73	57,04	3,81.10 <sup>-5</sup>	1272,26	9,79.10 <sup>9</sup>	2,01.10 <sup>8</sup>
6250,00	31,75	1176,73	55,95	3,76.10 <sup>-5</sup>	1265,39	9,81.10 <sup>9</sup>	2,10.10 <sup>8</sup>
6300,00	31,75	1176,73	54,86	3,71.10 <sup>-5</sup>	1258,32	9,83.10 <sup>9</sup>	2,21.10 <sup>8</sup>
6350,00	31,75	1176,73	53,77	3,65.10 <sup>-5</sup>	1251,04	9,84.10 <sup>9</sup>	2,31.10 <sup>8</sup>
6400,00	31,75	1176,73	52,68	3,60.10 <sup>-5</sup>	1243,56	9,86.10 <sup>9</sup>	2,42.10 <sup>8</sup>
6450,00	31,75	1176,73	51,59	3,55.10 <sup>-5</sup>	1235,85	9,87.10 <sup>9</sup>	2,53.10 <sup>8</sup>
6500,00	31,75	1176,73	50,50	3,50.10 <sup>-5</sup>	1227,91	9,88.10 <sup>9</sup>	2,65.10 <sup>8</sup>
6550,00	31,75	1176,73	49,37	3,44.10 <sup>-5</sup>	1218,74	9,88.10 <sup>9</sup>	2,77.10 <sup>8</sup>
6600,00	31,75	1176,73	48,24	3,39.10 <sup>-5</sup>	1209,29	9,87.10 <sup>9</sup>	2,89.10 <sup>8</sup>

6650,00	<b>31,75</b>	1176,73	47,11	$3,34 \cdot 10^{-5}$	1199,54	$9,86 \cdot 10^9$	$3,01 \cdot 10^8$
6700,00	<b>31,75</b>	1176,73	45,98	$3,29 \cdot 10^{-5}$	1189,48	$9,85 \cdot 10^9$	$3,14 \cdot 10^8$
<b>6700,00</b>					<b>620,00</b>		<b>4,05.10<sup>8</sup></b>
7000,00			<b>39,20</b>	$2,97 \cdot 10^{-5}$			

TABLE D.2: Données thermophysiques de l'aluminium issues de la littérature.

valeurs issues du site de la NASA [233]
valeurs calculées par l'intermédiaire des autres données
valeurs issues du rapport de Touloukian [227]
valeurs linéarisées sur l'intervalle considéré
valeurs de la fonction proposée par Alcock <i>et al.</i> pour le solide [4]
valeurs estimées par Touloukian [227]
valeurs de la fonction proposée par Alcock <i>et al.</i> pour le liquide [4]
valeurs que nous proposons [166]
valeurs calculées compte tenu de nos propositions sur le point critique
nouvelles valeurs proposées pour la conductivité thermique et la diffusivité thermique

TABLE D.3 – Légende de la table D.4.

T (K)	$C_p$ (J/mol/K)	$c_p$ (J/kg/K)	$k_T$ (W/m/K)	$a_T$ (m <sup>2</sup> /s)	$\rho$ (kg/m <sup>3</sup> )	h (J/m <sup>3</sup> )	$P_{vap}$ (Pa)
298,00	24,20	896,91	237,00	9,69.10 <sup>-5</sup>	2727,96	7,29.10 <sup>8</sup>	2,04.10 <sup>-46</sup>
300,00	24,23	898,17	237,00	9,68.10 <sup>-5</sup>	2725,93	7,35.10 <sup>8</sup>	4,95.10 <sup>-46</sup>
350,00	25,05	928,49	240,00	9,52.10 <sup>-5</sup>	2715,18	8,82.10 <sup>8</sup>	7,94.10 <sup>-38</sup>
400,00	25,73	953,76	240,00	9,36.10 <sup>-5</sup>	2688,41	1,03.10 <sup>9</sup>	1,12.10 <sup>-31</sup>
450,00	26,34	976,26	237,95	9,12.10 <sup>-5</sup>	2672,56	1,17.10 <sup>9</sup>	6,67.10 <sup>-27</sup>
500,00	26,91	997,35	236,00	8,88.10 <sup>-5</sup>	2664,72	1,33.10 <sup>9</sup>	4,38.10 <sup>-23</sup>
550,00	27,47	1018,07	233,95	8,63.10 <sup>-5</sup>	2664,34	1,49.10 <sup>9</sup>	5,78.10 <sup>-20</sup>
600,00	28,04	1039,38	231,00	8,37.10 <sup>-5</sup>	2655,30	1,66.10 <sup>9</sup>	2,29.10 <sup>-17</sup>
650,00	28,66	1062,24	227,58	8,11.10 <sup>-5</sup>	2643,42	1,83.10 <sup>9</sup>	3,59.10 <sup>-15</sup>
700,00	29,34	1087,56	225,00	7,84.10 <sup>-5</sup>	2638,84	2,01.10 <sup>9</sup>	2,73.10 <sup>-13</sup>
750,00	30,12	1116,24	220,90	7,60.10 <sup>-5</sup>	2603,91	2,18.10 <sup>9</sup>	1,16.10 <sup>-11</sup>
800,00	31,01	1149,12	218,00	7,36.10 <sup>-5</sup>	2577,59	2,37.10 <sup>9</sup>	3,06.10 <sup>-10</sup>
850,00	32,03	1187,11	213,90	7,14.10 <sup>-5</sup>	2523,63	2,55.10 <sup>9</sup>	5,50.10 <sup>-9</sup>
900,00	33,21	1230,88	210,00	6,92.10 <sup>-5</sup>	2465,46	2,73.10 <sup>9</sup>	7,15.10 <sup>-8</sup>
933,47	34,10	1263,98	208,00	6,80.10 <sup>-5</sup>	2420,00	2,86.10 <sup>9</sup>	3,41.10 <sup>-7</sup>
933,47	33,52	1242,16	178,68	5,98.10 <sup>-5</sup>	2405,38	3,03.10 <sup>9</sup>	3,44.10 <sup>-7</sup>
933,47	32,93	1220,35	149,35	5,16.10 <sup>-5</sup>	2371,76	3,17.10 <sup>9</sup>	3,48.10 <sup>-7</sup>
933,47	32,34	1198,54	120,03	4,34.10 <sup>-5</sup>	2307,43	3,27.10 <sup>9</sup>	3,52.10 <sup>-7</sup>
933,47	31,75	1176,73	90,70	3,52.10 <sup>-5</sup>	2189,72	3,27.10 <sup>9</sup>	3,55.10 <sup>-7</sup>
950,00	32,01	1186,42	91,28	3,55.10 <sup>-5</sup>	2167,37	3,30.10 <sup>9</sup>	7,13.10 <sup>-7</sup>
1000,00	32,01	1186,42	93,00	3,64.10 <sup>-5</sup>	2153,49	3,41.10 <sup>9</sup>	5,08.10 <sup>-6</sup>
1050,00	32,27	1196,11	94,71	3,72.10 <sup>-5</sup>	2128,48	3,52.10 <sup>9</sup>	3,01.10 <sup>-5</sup>
1100,00	32,53	1205,80	96,40	3,80.10 <sup>-5</sup>	2103,86	3,63.10 <sup>9</sup>	1,51.10 <sup>-4</sup>
1150,00	32,80	1215,49	97,90	3,88.10 <sup>-5</sup>	2078,60	3,73.10 <sup>9</sup>	6,61.10 <sup>-4</sup>
1200,00	33,06	1225,18	99,40	3,95.10 <sup>-5</sup>	2053,94	3,84.10 <sup>9</sup>	2,56.10 <sup>-3</sup>
1250,00	33,32	1234,87	100,49	4,03.10 <sup>-5</sup>	2021,84	3,92.10 <sup>9</sup>	8,88.10 <sup>-3</sup>
1300,00	33,58	1244,57	102,00	4,10.10 <sup>-5</sup>	1998,93	4,03.10 <sup>9</sup>	2,80.10 <sup>-2</sup>
1350,00	33,84	1254,26	103,37	4,17.10 <sup>-5</sup>	1976,31	4,13.10 <sup>9</sup>	8,11.10 <sup>-2</sup>
1400,00	34,10	1263,95	105,00	4,24.10 <sup>-5</sup>	1959,27	4,24.10 <sup>9</sup>	2,18.10 <sup>-1</sup>

1450,00	34,36	1273,64	106,37	4,30.10 <sup>-5</sup>	1942,18	4,36.10 <sup>9</sup>	5,46.10 <sup>-1</sup>
1500,00	34,63	1283,33	107,00	4,36.10 <sup>-5</sup>	1912,32	4,44.10 <sup>9</sup>	1,29.10 <sup>0</sup>
1550,00	34,89	1293,02	107,68	4,42.10 <sup>-5</sup>	1884,17	4,52.10 <sup>9</sup>	2,87.10 <sup>0</sup>
1600,00	35,15	1302,71	109,00	4,48.10 <sup>-5</sup>	1867,67	4,63.10 <sup>9</sup>	6,10.10 <sup>0</sup>
1650,00	35,41	1312,40	109,68	4,54.10 <sup>-5</sup>	1842,88	4,72.10 <sup>9</sup>	1,24.10 <sup>1</sup>
1700,00	35,67	1322,09	111,00	4,59.10 <sup>-5</sup>	1829,15	4,84.10 <sup>9</sup>	2,41.10 <sup>1</sup>
1750,00	35,93	1331,78	111,00	4,62.10 <sup>-5</sup>	1804,05	4,92.10 <sup>9</sup>	4,50.10 <sup>1</sup>
1800,00	36,19	1341,47	112,00	4,68.10 <sup>-5</sup>	1783,98	5,02.10 <sup>9</sup>	8,14.10 <sup>1</sup>
1850,00	36,46	1351,16	112,68	4,73.10 <sup>-5</sup>	1765,02	5,11.10 <sup>9</sup>	1,43.10 <sup>2</sup>
1900,00	36,72	1360,85	113,00	4,77.10 <sup>-5</sup>	1740,80	5,19.10 <sup>9</sup>	2,43.10 <sup>2</sup>
1950,00	36,98	1370,54	113,68	4,81.10 <sup>-5</sup>	1724,48	5,29.10 <sup>9</sup>	4,01.10 <sup>2</sup>
2000,00	37,24	1380,23	114,00	4,85.10 <sup>-5</sup>	1702,98	5,38.10 <sup>9</sup>	6,48.10 <sup>2</sup>
2050,00	37,50	1389,93	114,00	4,88.10 <sup>-5</sup>	1679,85	5,45.10 <sup>9</sup>	1,02.10 <sup>3</sup>
2100,00	37,76	1399,62	114,27	4,92.10 <sup>-5</sup>	661,09	5,54.10 <sup>9</sup>	1,58.10 <sup>3</sup>
2150,00	38,03	1409,31	114,54	4,95.10 <sup>-5</sup>	1642,67	5,63.10 <sup>9</sup>	2,38.10 <sup>3</sup>
2200,00	38,29	1419,00	115,00	4,98.10 <sup>-5</sup>	1627,37	5,73.10 <sup>9</sup>	3,53.10 <sup>3</sup>
2250,00	38,55	1428,69	115,00	5,01.10 <sup>-5</sup>	1608,26	5,81.10 <sup>9</sup>	5,15.10 <sup>3</sup>
2300,00	38,81	1438,38	115,00	5,03.10 <sup>-5</sup>	1589,49	5,89.10 <sup>9</sup>	7,39.10 <sup>3</sup>
2350,00	39,07	1448,07	115,00	5,06.10 <sup>-5</sup>	1571,04	5,97.10 <sup>9</sup>	1,04.10 <sup>4</sup>
2400,00	39,33	1457,76	115,00	5,08.10 <sup>-5</sup>	1552,92	6,05.10 <sup>9</sup>	1,45.10 <sup>4</sup>
2450,00	39,59	1467,45	115,00	5,10.10 <sup>-5</sup>	1536,61	6,13.10 <sup>9</sup>	2,00.10 <sup>4</sup>
2500,00	39,86	1477,14	115,00	5,12.10 <sup>-5</sup>	1520,57	6,22.10 <sup>9</sup>	2,71.10 <sup>4</sup>
2550,00	40,12	1486,83	115,00	5,14.10 <sup>-5</sup>	1504,78	6,30.10 <sup>9</sup>	3,63.10 <sup>4</sup>
2600,00	40,38	1496,52	115,00	5,16.10 <sup>-5</sup>	1489,24	6,39.10 <sup>9</sup>	4,81.10 <sup>4</sup>
2650,00	40,64	1506,21	115,00	5,18.10 <sup>-5</sup>	1475,37	6,47.10 <sup>9</sup>	6,30.10 <sup>4</sup>
2700,00	40,90	1515,90	114,79	5,19.10 <sup>-5</sup>	1459,02	6,55.10 <sup>9</sup>	8,18.10 <sup>4</sup>
2750,00	41,16	1525,60	114,39	5,21.10 <sup>-5</sup>	1440,60	6,62.10 <sup>9</sup>	1,05.10 <sup>5</sup>
2800,00	41,42	1535,29	114,00	5,22.10 <sup>-5</sup>	1422,48	6,68.10 <sup>9</sup>	1,34.10 <sup>5</sup>
2850,00	41,69	1544,98	113,32	5,23.10 <sup>-5</sup>	1401,73	6,73.10 <sup>9</sup>	1,69.10 <sup>5</sup>
2900,00	41,95	1554,67	113,00	5,25.10 <sup>-5</sup>	1385,78	6,80.10 <sup>9</sup>	2,12.10 <sup>5</sup>
2950,00	42,21	1564,36	113,00	5,26.10 <sup>-5</sup>	1373,93	6,89.10 <sup>9</sup>	2,64.10 <sup>5</sup>
3000,00	42,47	1574,05	113,00	5,27.10 <sup>-5</sup>	1362,23	6,97.10 <sup>9</sup>	3,26.10 <sup>5</sup>
3050,00	42,73	1583,74	112,32	5,27.10 <sup>-5</sup>	1345,69	7,03.10 <sup>9</sup>	4,00.10 <sup>5</sup>
3100,00	42,99	1593,43	111,79	5,27.10 <sup>-5</sup>	1331,22	7,10.10 <sup>9</sup>	4,87.10 <sup>5</sup>
3150,00	43,25	1603,12	111,39	5,27.10 <sup>-5</sup>	1318,51	7,18.10 <sup>9</sup>	5,90.10 <sup>5</sup>
3200,00	43,52	1612,81	111,00	5,27.10 <sup>-5</sup>	1305,96	7,26.10 <sup>9</sup>	7,10.10 <sup>5</sup>
3250,00	43,78	1622,50	110,32	5,27.10 <sup>-5</sup>	1290,15	7,32.10 <sup>9</sup>	8,49.10 <sup>5</sup>
3300,00	44,04	1632,19	109,79	5,27.10 <sup>-5</sup>	1276,35	7,38.10 <sup>9</sup>	1,01.10 <sup>6</sup>
3350,00	44,30	1641,88	109,39	5,27.10 <sup>-5</sup>	1264,27	7,46.10 <sup>9</sup>	1,20.10 <sup>6</sup>
3400,00	44,56	1651,57	109,00	5,27.10 <sup>-5</sup>	1252,33	7,53.10 <sup>9</sup>	1,41.10 <sup>6</sup>
3450,00	44,82	1661,26	108,29	5,27.10 <sup>-5</sup>	1236,88	7,58.10 <sup>9</sup>	1,65.10 <sup>6</sup>
3500,00	45,08	1670,96	107,58	5,27.10 <sup>-5</sup>	1221,62	7,63.10 <sup>9</sup>	1,93.10 <sup>6</sup>
3550,00	45,35	1680,65	106,86	5,26.10 <sup>-5</sup>	1209,28	7,70.10 <sup>9</sup>	2,24.10 <sup>6</sup>
3600,00	45,61	1690,34	106,15	5,25.10 <sup>-5</sup>	1197,07	7,76.10 <sup>9</sup>	2,59.10 <sup>6</sup>
3650,00	45,87	1700,03	105,36	5,23.10 <sup>-5</sup>	1184,12	7,82.10 <sup>9</sup>	2,99.10 <sup>6</sup>
3700,00	46,13	1709,72	104,58	5,22.10 <sup>-5</sup>	1171,30	7,87.10 <sup>9</sup>	3,43.10 <sup>6</sup>

3750,00	46,39	1719,41	103,79	$5,21 \cdot 10^{-5}$	1158,59	$7,93 \cdot 10^9$	$3,93 \cdot 10^6$
3800,00	46,65	1729,10	103,00	$5,20 \cdot 10^{-5}$	1145,99	$7,98 \cdot 10^9$	$4,48 \cdot 10^6$
3850,00	46,92	1738,79	102,32	$5,19 \cdot 10^{-5}$	1134,64	$8,05 \cdot 10^9$	$5,09 \cdot 10^6$
3900,00	47,18	1748,48	101,51	$5,17 \cdot 10^{-5}$	1122,09	$8,10 \cdot 10^9$	$5,76 \cdot 10^6$
3950,00	47,44	1758,17	100,61	$5,16 \cdot 10^{-5}$	1108,52	$8,14 \cdot 10^9$	$6,50 \cdot 10^6$
4000,00	47,70	1767,86	99,70	$5,15 \cdot 10^{-5}$	1095,06	$8,18 \cdot 10^9$	$7,32 \cdot 10^6$
4050,00	47,96	1777,55	98,85	$5,13 \cdot 10^{-5}$	1083,81	$8,23 \cdot 10^9$	$8,21 \cdot 10^6$
4100,00	48,22	1787,24	98,00	$5,11 \cdot 10^{-5}$	1072,63	$8,29 \cdot 10^9$	$9,19 \cdot 10^6$
4150,00	48,48	1796,93	97,15	$5,09 \cdot 10^{-5}$	1061,54	$8,34 \cdot 10^9$	$1,03 \cdot 10^7$
4200,00	48,75	1806,62	96,30	$5,07 \cdot 10^{-5}$	1050,53	$8,39 \cdot 10^9$	$1,14 \cdot 10^7$
4250,00	49,01	1816,32	95,45	$5,06 \cdot 10^{-5}$	1039,59	$8,44 \cdot 10^9$	$1,27 \cdot 10^7$
4300,00	49,27	1826,01	94,60	$5,04 \cdot 10^{-5}$	1028,73	$8,49 \cdot 10^9$	$1,40 \cdot 10^7$
4350,00	49,53	1835,70	93,75	$5,02 \cdot 10^{-5}$	1017,95	$8,53 \cdot 10^9$	$1,55 \cdot 10^7$
4400,00	49,79	1845,39	92,90	$5,00 \cdot 10^{-5}$	1007,24	$8,58 \cdot 10^9$	$1,71 \cdot 10^7$
4450,00	50,05	1855,08	92,05	$4,98 \cdot 10^{-5}$	996,60	$8,62 \cdot 10^9$	$1,88 \cdot 10^7$
4500,00	50,31	1864,77	91,20	$4,96 \cdot 10^{-5}$	986,03	$8,67 \cdot 10^9$	$2,06 \cdot 10^7$
4550,00	50,58	1874,46	90,27	$4,94 \cdot 10^{-5}$	975,84	$8,71 \cdot 10^9$	$2,26 \cdot 10^7$
4600,00	50,84	1884,15	89,34	$4,91 \cdot 10^{-5}$	965,71	$8,75 \cdot 10^9$	$2,47 \cdot 10^7$
4650,00	51,10	1893,84	88,41	$4,89 \cdot 10^{-5}$	955,64	$8,80 \cdot 10^9$	$2,70 \cdot 10^7$
4700,00	51,36	1903,53	87,48	$4,86 \cdot 10^{-5}$	945,61	$8,84 \cdot 10^9$	$2,94 \cdot 10^7$
4750,00	51,62	1913,22	86,55	$4,84 \cdot 10^{-5}$	935,63	$8,87 \cdot 10^9$	$3,19 \cdot 10^7$
4800,00	51,88	1922,91	85,62	$4,81 \cdot 10^{-5}$	925,70	$8,91 \cdot 10^9$	$3,47 \cdot 10^7$
4850,00	52,14	1932,60	84,69	$4,79 \cdot 10^{-5}$	915,81	$8,95 \cdot 10^9$	$3,75 \cdot 10^7$
4900,00	52,41	1942,29	83,76	$4,76 \cdot 10^{-5}$	905,97	$8,98 \cdot 10^9$	$4,06 \cdot 10^7$
4950,00	52,67	1951,99	82,83	$4,74 \cdot 10^{-5}$	896,17	$9,01 \cdot 10^9$	$4,39 \cdot 10^7$
5000,00	52,93	1961,68	81,90	$4,71 \cdot 10^{-5}$	886,41	$9,05 \cdot 10^9$	$4,73 \cdot 10^7$
5050,00	53,19	1971,37	80,88	$4,67 \cdot 10^{-5}$	877,66	$9,09 \cdot 10^9$	$5,09 \cdot 10^7$
5100,00	53,45	1981,06	79,86	$4,64 \cdot 10^{-5}$	868,92	$9,12 \cdot 10^9$	$5,47 \cdot 10^7$
5150,00	53,71	1990,75	78,83	$4,60 \cdot 10^{-5}$	860,20	$9,16 \cdot 10^9$	$5,88 \cdot 10^7$
5200,00	53,97	2000,44	77,81	$4,57 \cdot 10^{-5}$	851,50	$9,20 \cdot 10^9$	$6,30 \cdot 10^7$
5250,00	54,24	2010,13	76,79	$4,53 \cdot 10^{-5}$	842,81	$9,23 \cdot 10^9$	$6,75 \cdot 10^7$
5300,00	54,50	2019,82	75,77	$4,50 \cdot 10^{-5}$	834,13	$9,26 \cdot 10^9$	$7,22 \cdot 10^7$
5350,00	54,76	2029,51	74,74	$4,46 \cdot 10^{-5}$	825,46	$9,29 \cdot 10^9$	$7,71 \cdot 10^7$
5400,00	55,02	2039,20	73,72	$4,43 \cdot 10^{-5}$	816,80	$9,32 \cdot 10^9$	$8,22 \cdot 10^7$
5450,00	55,28	2048,89	72,70	$4,39 \cdot 10^{-5}$	808,14	$9,34 \cdot 10^9$	$8,76 \cdot 10^7$
5500,00	55,54	2058,58	71,68	$4,36 \cdot 10^{-5}$	799,49	$9,37 \cdot 10^9$	$9,32 \cdot 10^7$
5550,00	55,81	2068,27	70,70	$4,32 \cdot 10^{-5}$	791,34	$9,40 \cdot 10^9$	$9,91 \cdot 10^7$
5600,00	56,07	2077,96	69,72	$4,28 \cdot 10^{-5}$	783,19	$9,42 \cdot 10^9$	$1,05 \cdot 10^8$
5650,00	56,33	2087,65	68,74	$4,25 \cdot 10^{-5}$	775,05	$9,45 \cdot 10^9$	$1,12 \cdot 10^8$
5700,00	56,59	2097,35	67,77	$4,21 \cdot 10^{-5}$	766,91	$9,47 \cdot 10^9$	$1,18 \cdot 10^8$
5750,00	56,85	2107,04	66,79	$4,18 \cdot 10^{-5}$	758,76	$9,49 \cdot 10^9$	$1,25 \cdot 10^8$
5800,00	57,11	2116,73	65,81	$4,14 \cdot 10^{-5}$	750,61	$9,51 \cdot 10^9$	$1,32 \cdot 10^8$
5850,00	57,37	2126,42	64,83	$4,11 \cdot 10^{-5}$	742,46	$9,53 \cdot 10^9$	$1,40 \cdot 10^8$
5900,00	57,64	2136,11	63,86	$4,07 \cdot 10^{-5}$	734,30	$9,55 \cdot 10^9$	$1,48 \cdot 10^8$
5950,00	57,90	2145,80	62,88	$4,04 \cdot 10^{-5}$	726,12	$9,56 \cdot 10^9$	$1,56 \cdot 10^8$
6000,00	58,16	2155,49	61,90	$4,00 \cdot 10^{-5}$	717,93	$9,57 \cdot 10^9$	$1,64 \cdot 10^8$

6050,00	<b>58,42</b>	2165,18	60,78	$3,95 \cdot 10^{-5}$	711,12	$9,60 \cdot 10^9$	$1,73 \cdot 10^8$
6100,00	<b>58,68</b>	2174,87	59,66	$3,90 \cdot 10^{-5}$	704,28	$9,62 \cdot 10^9$	$1,82 \cdot 10^8$
6150,00	<b>58,94</b>	2184,56	58,54	$3,84 \cdot 10^{-5}$	697,39	$9,65 \cdot 10^9$	$1,91 \cdot 10^8$
6200,00	<b>59,20</b>	2194,25	57,42	$3,79 \cdot 10^{-5}$	690,46	$9,67 \cdot 10^9$	$2,01 \cdot 10^8$
6250,00	<b>59,47</b>	2203,94	56,30	$3,74 \cdot 10^{-5}$	683,48	$9,69 \cdot 10^9$	$2,10 \cdot 10^8$
6300,00	<b>59,73</b>	2213,63	55,18	$3,69 \cdot 10^{-5}$	676,45	$9,70 \cdot 10^9$	$2,21 \cdot 10^8$
6350,00	<b>59,99</b>	2223,32	54,06	$3,63 \cdot 10^{-5}$	669,37	$9,72 \cdot 10^9$	$2,31 \cdot 10^8$
6400,00	<b>60,25</b>	2233,01	52,94	$3,58 \cdot 10^{-5}$	662,23	$9,73 \cdot 10^9$	$2,42 \cdot 10^8$
6450,00	<b>60,51</b>	2242,71	51,82	$3,53 \cdot 10^{-5}$	655,03	$9,74 \cdot 10^9$	$2,53 \cdot 10^8$
6500,00	<b>60,77</b>	2252,40	<b>50,70</b>	$3,48 \cdot 10^{-5}$	647,75	$9,74 \cdot 10^9$	$2,65 \cdot 10^8$
6550,00	<b>61,03</b>	2262,09	49,62	$3,42 \cdot 10^{-5}$	640,92	$9,75 \cdot 10^9$	$2,77 \cdot 10^8$
6600,00	<b>61,30</b>	2271,78	48,54	$3,37 \cdot 10^{-5}$	634,02	$9,76 \cdot 10^9$	$2,89 \cdot 10^8$
6650,00	<b>61,56</b>	2281,47	47,46	$3,32 \cdot 10^{-5}$	627,05	$9,76 \cdot 10^9$	$3,01 \cdot 10^8$
6700,00	<b>61,82</b>	2291,16	46,38	$3,27 \cdot 10^{-5}$	620,00	$9,76 \cdot 10^9$	$3,14 \cdot 10^8$
<b>6700,00</b>	<b>61,82</b>				<b>620,00</b>		<b>4,05 \cdot 10^8</b>
7000,00			<b>39,90</b>	<b><math>2,95 \cdot 10^{-5}</math></b>			

TABLE D.4: Données thermophysique de l'aluminium issues de la littérature. La capacité thermique à pression constante est réévaluée afin qu'elle soit cohérente avec celle de la masse volumique au point critique.

valeurs issues du site de la NASA [233]	
valeurs calculées par l'intermédiaire des autres données	
valeurs issues du rapport de Touloukian [227]	
valeurs linéarisées sur l'intervalle considéré	
fonction proposée par Alcock <i>et al.</i> pour le solide [4]	
valeurs estimées par Touloukian [227]	
valeurs de la fonction proposée pour $P_{vap}$ sur la gamme [933,47 ; 6700] K	
valeurs que nous proposons [166]	
valeurs calculées compte tenu de nos propositions sur le point critique	
nouvelles valeurs proposées pour la conductivité thermique et la diffusivité thermique	
valeurs de la fonction interpolée donnant $h$ en fonction de la température	

TABLE D.5 – Légende de la table D.6.

T (K)	$C_p$ (J/mol/K)	$c_p$ (J/kg/K)	$k_T$ (W/m/K)	$a_T$ (m <sup>2</sup> /s)	$\rho$ (kg/m <sup>3</sup> )	<b>h</b> (J/m <sup>3</sup> )	$P_{vap}$ (Pa)
298,00	24,20	896,91	237,00	9,69.10 <sup>-5</sup>	2727,96	7,29.10 <sup>8</sup>	2,04.10 <sup>-46</sup>
300,00	24,23	898,17	237,00	9,68.10 <sup>-5</sup>	2725,93	7,35.10 <sup>8</sup>	4,95.10 <sup>-46</sup>
350,00	25,05	928,49	240,00	9,52.10 <sup>-5</sup>	2715,18	8,82.10 <sup>8</sup>	7,94.10 <sup>-38</sup>
400,00	25,73	953,76	240,00	9,36.10 <sup>-5</sup>	2688,41	1,03.10 <sup>9</sup>	1,12.10 <sup>-31</sup>
450,00	26,34	976,26	237,95	9,12.10 <sup>-5</sup>	2672,56	1,17.10 <sup>9</sup>	6,67.10 <sup>-27</sup>
500,00	26,91	997,35	236,00	8,88.10 <sup>-5</sup>	2664,72	1,33.10 <sup>9</sup>	4,38.10 <sup>-23</sup>
550,00	27,47	1018,07	233,95	8,63.10 <sup>-5</sup>	2664,34	1,49.10 <sup>9</sup>	5,78.10 <sup>-20</sup>
600,00	28,04	1039,38	231,00	8,37.10 <sup>-5</sup>	2655,30	1,66.10 <sup>9</sup>	2,29.10 <sup>-17</sup>
650,00	28,66	1062,24	227,58	8,11.10 <sup>-5</sup>	2643,42	1,83.10 <sup>9</sup>	3,59.10 <sup>-15</sup>
700,00	29,34	1087,56	225,00	7,84.10 <sup>-5</sup>	2638,84	2,01.10 <sup>9</sup>	2,73.10 <sup>-13</sup>
750,00	30,12	1116,24	220,90	7,60.10 <sup>-5</sup>	2603,91	2,18.10 <sup>9</sup>	1,16.10 <sup>-11</sup>
800,00	31,01	1149,12	218,00	7,36.10 <sup>-5</sup>	2577,59	2,37.10 <sup>9</sup>	3,06.10 <sup>-10</sup>
850,00	32,03	1187,11	213,90	7,14.10 <sup>-5</sup>	2523,63	2,55.10 <sup>9</sup>	5,50.10 <sup>-9</sup>
900,00	33,21	1230,88	210,00	6,92.10 <sup>-5</sup>	2465,46	2,73.10 <sup>9</sup>	7,15.10 <sup>-8</sup>
933,47	34,10	1263,98	208,00	6,80.10 <sup>-5</sup>	2420,00	2,86.10 <sup>9</sup>	3,41.10 <sup>-7</sup>
933,47	33,52	1242,16	178,68	5,98.10 <sup>-5</sup>	2405,38	3,03.10 <sup>9</sup>	3,38.10 <sup>-7</sup>
933,47	32,93	1220,35	149,35	5,16.10 <sup>-5</sup>	2371,76	3,17.10 <sup>9</sup>	3,35.10 <sup>-7</sup>
933,47	32,34	1198,54	120,03	4,34.10 <sup>-5</sup>	2307,43	3,27.10 <sup>9</sup>	3,33.10 <sup>-7</sup>
933,47	31,75	1176,73	90,70	3,52.10 <sup>-5</sup>	2189,72	3,28.10 <sup>9</sup>	3,30.10 <sup>-7</sup>
950,00	32,01	1186,42	91,28	3,55.10 <sup>-5</sup>	2167,37	3,32.10 <sup>9</sup>	6,66.10 <sup>-7</sup>
1000,00	32,01	1186,42	93,00	3,64.10 <sup>-5</sup>	2153,49	3,42.10 <sup>9</sup>	4,84.10 <sup>-6</sup>
1050,00	32,27	1196,11	94,71	3,72.10 <sup>-5</sup>	2128,48	3,53.10 <sup>9</sup>	2,91.10 <sup>-5</sup>
1100,00	32,53	1205,80	96,40	3,80.10 <sup>-5</sup>	2103,86	3,64.10 <sup>9</sup>	1,49.10 <sup>-4</sup>
1150,00	32,80	1215,49	97,90	3,88.10 <sup>-5</sup>	2078,60	3,74.10 <sup>9</sup>	6,60.10 <sup>-4</sup>
1200,00	33,06	1225,18	99,40	3,95.10 <sup>-5</sup>	2053,94	3,84.10 <sup>9</sup>	2,59.10 <sup>-3</sup>
1250,00	33,32	1234,87	100,49	4,03.10 <sup>-5</sup>	2021,84	3,94.10 <sup>9</sup>	9,08.10 <sup>-3</sup>
1300,00	33,58	1244,57	102,00	4,10.10 <sup>-5</sup>	1998,93	4,05.10 <sup>9</sup>	2,89.10 <sup>-2</sup>
1350,00	33,84	1254,26	103,37	4,17.10 <sup>-5</sup>	1976,31	4,15.10 <sup>9</sup>	8,47.10 <sup>-2</sup>

1400,00	34,10	1263,95	105,00	4,24.10 <sup>-5</sup>	1959,27	4,25.10 <sup>9</sup>	2,29.10 <sup>-1</sup>
1450,00	34,36	1273,64	106,37	4,30.10 <sup>-5</sup>	1942,18	4,34.10 <sup>9</sup>	5,80.10 <sup>-1</sup>
1500,00	34,63	1283,33	107,00	4,36.10 <sup>-5</sup>	1912,32	4,44.10 <sup>9</sup>	1,38.10 <sup>0</sup>
1550,00	34,89	1293,02	107,68	4,42.10 <sup>-5</sup>	1884,17	4,54.10 <sup>9</sup>	3,10.10 <sup>0</sup>
1600,00	35,15	1302,71	109,00	4,48.10 <sup>-5</sup>	1867,67	4,63.10 <sup>9</sup>	6,64.10 <sup>0</sup>
1650,00	35,41	1312,40	109,68	4,54.10 <sup>-5</sup>	1842,88	4,73.10 <sup>9</sup>	1,35.10 <sup>1</sup>
1700,00	35,67	1322,09	111,00	4,59.10 <sup>-5</sup>	1829,15	4,82.10 <sup>9</sup>	2,65.10 <sup>1</sup>
1750,00	35,93	1331,78	111,00	4,62.10 <sup>-5</sup>	1804,05	4,92.10 <sup>9</sup>	5,00.10 <sup>1</sup>
1800,00	36,19	1341,47	112,00	4,68.10 <sup>-5</sup>	1783,98	5,01.10 <sup>9</sup>	9,09.10 <sup>1</sup>
1850,00	36,46	1351,16	112,68	4,73.10 <sup>-5</sup>	1765,02	5,10.10 <sup>9</sup>	1,60.10 <sup>2</sup>
1900,00	36,72	1360,85	113,00	4,77.10 <sup>-5</sup>	1740,80	5,19.10 <sup>9</sup>	2,73.10 <sup>2</sup>
1950,00	36,98	1370,54	113,68	4,81.10 <sup>-5</sup>	1724,48	5,28.10 <sup>9</sup>	4,55.10 <sup>2</sup>
2000,00	37,24	1380,23	114,00	4,85.10 <sup>-5</sup>	1702,98	5,37.10 <sup>9</sup>	7,37.10 <sup>2</sup>
2050,00	37,50	1389,93	114,00	4,88.10 <sup>-5</sup>	1679,85	5,46.10 <sup>9</sup>	1,17.10 <sup>3</sup>
2100,00	37,76	1399,62	114,27	4,92.10 <sup>-5</sup>	1661,09	5,55.10 <sup>9</sup>	1,81.10 <sup>3</sup>
2150,00	38,03	1409,31	114,54	4,95.10 <sup>-5</sup>	1642,67	5,63.10 <sup>9</sup>	2,74.10 <sup>3</sup>
2200,00	38,29	1419,00	115,00	4,98.10 <sup>-5</sup>	1627,37	5,72.10 <sup>9</sup>	4,09.10 <sup>3</sup>
2250,00	38,55	1428,69	115,00	5,01.10 <sup>-5</sup>	1608,26	5,80.10 <sup>9</sup>	5,98.10 <sup>3</sup>
2300,00	38,81	1438,38	115,00	5,03.10 <sup>-5</sup>	1589,49	5,88.10 <sup>9</sup>	8,61.10 <sup>3</sup>
2350,00	39,07	1448,07	115,00	5,06.10 <sup>-5</sup>	1571,04	5,97.10 <sup>9</sup>	1,22.10 <sup>4</sup>
2400,00	39,33	1457,76	115,00	5,08.10 <sup>-5</sup>	1552,92	6,05.10 <sup>9</sup>	1,70.10 <sup>4</sup>
2450,00	39,59	1467,4	115,00	5,10.10 <sup>-5</sup>	1536,61	6,13.10 <sup>9</sup>	2,35.10 <sup>4</sup>
2500,00	39,86	1477,14	115,00	5,12.10 <sup>-5</sup>	1520,57	6,21.10 <sup>9</sup>	3,19.10 <sup>4</sup>
2550,00	40,12	1486,83	115,00	5,14.10 <sup>-5</sup>	1504,78	6,29.10 <sup>9</sup>	4,29.10 <sup>4</sup>
2600,00	40,38	1496,52	115,00	5,16.10 <sup>-5</sup>	1489,24	6,37.10 <sup>9</sup>	5,70.10 <sup>4</sup>
2650,00	40,64	1506,21	115,00	5,18.10 <sup>-5</sup>	1475,37	6,44.10 <sup>9</sup>	7,49.10 <sup>4</sup>
2700,00	40,90	1515,90	114,79	5,19.10 <sup>-5</sup>	1459,02	6,52.10 <sup>9</sup>	9,75.10 <sup>4</sup>
2750,00	41,16	1525,60	114,39	5,21.10 <sup>-5</sup>	1440,60	6,60.10 <sup>9</sup>	1,26.10 <sup>5</sup>
2800,00	41,42	1535,29	114,00	5,22.10 <sup>-5</sup>	1422,48	6,67.10 <sup>9</sup>	1,60.10 <sup>5</sup>
2850,00	41,69	1544,98	113,32	5,23.10 <sup>-5</sup>	1401,73	6,74.10 <sup>9</sup>	2,03.10 <sup>5</sup>
2900,00	41,95	1554,67	113,00	5,25.10 <sup>-5</sup>	1385,78	6,82.10 <sup>9</sup>	2,55.10 <sup>5</sup>
2950,00	42,21	1564,36	113,00	5,26.10 <sup>-5</sup>	1373,93	6,89.10 <sup>9</sup>	3,18.10 <sup>5</sup>
3000,00	42,47	1574,0	113,00	5,27.10 <sup>-5</sup>	1362,23	6,96.10 <sup>9</sup>	3,94.10 <sup>5</sup>
3050,00	42,73	1583,74	112,32	5,27.10 <sup>-5</sup>	1345,69	7,03.10 <sup>9</sup>	4,84.10 <sup>5</sup>
3100,00	42,99	1593,43	111,79	5,27.10 <sup>-5</sup>	1331,22	7,10.10 <sup>9</sup>	5,90.10 <sup>5</sup>
3150,00	43,25	1603,12	111,39	5,27.10 <sup>-5</sup>	1318,51	7,17.10 <sup>9</sup>	7,16.10 <sup>5</sup>
3200,00	43,52	1612,81	111,00	5,27.10 <sup>-5</sup>	1305,96	7,24.10 <sup>9</sup>	8,63.10 <sup>5</sup>
3250,00	43,78	1622,50	110,32	5,27.10 <sup>-5</sup>	1290,15	7,30.10 <sup>9</sup>	1,03.10 <sup>6</sup>
3300,00	44,04	1632,19	109,79	5,27.10 <sup>-5</sup>	1276,35	7,37.10 <sup>9</sup>	1,23.10 <sup>6</sup>
3350,00	44,30	1641,88	109,39	5,27.10 <sup>-5</sup>	1264,27	7,43.10 <sup>9</sup>	1,46.10 <sup>6</sup>
3400,00	44,56	1651,57	109,00	5,27.10 <sup>-5</sup>	1252,33	7,50.10 <sup>9</sup>	1,72.10 <sup>6</sup>
3450,00	44,82	1661,26	108,29	5,27.10 <sup>-5</sup>	1236,88	7,56.10 <sup>9</sup>	2,03.10 <sup>6</sup>
3500,00	45,08	1670,96	107,58	5,27.10 <sup>-5</sup>	1221,62	7,62.10 <sup>9</sup>	2,37.10 <sup>6</sup>
3550,00	45,35	1680,65	106,86	5,26.10 <sup>-5</sup>	1209,28	7,68.10 <sup>9</sup>	2,76.10 <sup>6</sup>
3600,00	45,61	1690,34	106,15	5,25.10 <sup>-5</sup>	1197,07	7,74.10 <sup>9</sup>	3,19.10 <sup>6</sup>
3650,00	45,87	1700,03	105,36	5,23.10 <sup>-5</sup>	1184,12	7,80.10 <sup>9</sup>	3,69.10 <sup>6</sup>

3700,00	46,13	1709,72	104,58	5,22.10 <sup>-5</sup>	1171,30	7,86.10 <sup>9</sup>	4,24.10 <sup>6</sup>
3750,00	46,39	1719,41	103,79	5,21.10 <sup>-5</sup>	1158,59	7,92.10 <sup>9</sup>	4,85.10 <sup>6</sup>
3800,00	46,65	1729,10	103,00	5,20.10 <sup>-5</sup>	1145,99	7,98.10 <sup>9</sup>	5,54.10 <sup>6</sup>
3850,00	46,92	1738,79	102,32	5,19.10 <sup>-5</sup>	1134,64	8,03.10 <sup>9</sup>	6,30.10 <sup>6</sup>
3900,00	47,18	1748,48	101,51	5,17.10 <sup>-5</sup>	1122,09	8,09.10 <sup>9</sup>	7,14.10 <sup>6</sup>
3950,00	47,44	1758,17	100,61	5,16.10 <sup>-5</sup>	1108,52	8,14.10 <sup>9</sup>	8,07.10 <sup>6</sup>
4000,00	47,70	1767,86	99,70	5,15.10 <sup>-5</sup>	1095,06	8,19.10 <sup>9</sup>	9,09.10 <sup>6</sup>
4050,00	47,96	1777,55	98,85	5,13.10 <sup>-5</sup>	1083,81	8,25.10 <sup>9</sup>	1,02.10 <sup>7</sup>
4100,00	48,22	1787,24	98,00	5,11.10 <sup>-5</sup>	1072,63	8,30.10 <sup>9</sup>	1,14.10 <sup>7</sup>
4150,00	48,48	1796,93	97,15	5,09.10 <sup>-5</sup>	1061,54	8,35.10 <sup>9</sup>	1,28.10 <sup>7</sup>
4200,00	48,75	1806,62	96,30	5,07.10 <sup>-5</sup>	1050,53	8,40.10 <sup>9</sup>	1,42.10 <sup>7</sup>
4250,00	49,01	1816,32	95,45	5,06.10 <sup>-5</sup>	1039,59	8,45.10 <sup>9</sup>	1,58.10 <sup>7</sup>
4300,00	49,27	1826,01	94,60	5,04.10 <sup>-5</sup>	1028,73	8,50.10 <sup>9</sup>	1,75.10 <sup>7</sup>
4350,00	49,53	1835,70	93,75	5,02.10 <sup>-5</sup>	1017,95	8,54.10 <sup>9</sup>	1,94.10 <sup>7</sup>
4400,00	49,79	1845,39	92,90	5,00.10 <sup>-5</sup>	1007,24	8,59.10 <sup>9</sup>	2,14.10 <sup>7</sup>
4450,00	50,05	1855,08	92,05	4,98.10 <sup>-5</sup>	996,60	8,63.10 <sup>9</sup>	2,36.10 <sup>7</sup>
4500,00	50,31	1864,77	91,20	4,96.10 <sup>-5</sup>	986,03	8,68.10 <sup>9</sup>	2,59.10 <sup>7</sup>
4550,00	50,58	1874,46	90,27	4,94.10 <sup>-5</sup>	975,84	8,72.10 <sup>9</sup>	2,84.10 <sup>7</sup>
4600,00	50,84	1884,15	89,34	4,91.10 <sup>-5</sup>	965,71	8,76.10 <sup>9</sup>	3,11.10 <sup>7</sup>
4650,00	51,10	1893,84	88,41	4,89.10 <sup>-5</sup>	955,64	8,81.10 <sup>9</sup>	3,39.10 <sup>7</sup>
4700,00	51,36	1903,53	87,48	4,86.10 <sup>-5</sup>	945,61	8,85.10 <sup>9</sup>	3,70.10 <sup>7</sup>
4750,00	51,62	1913,22	86,55	4,84.10 <sup>-5</sup>	935,63	8,89.10 <sup>9</sup>	4,02.10 <sup>7</sup>
4800,00	51,88	1922,91	85,62	4,81.10 <sup>-5</sup>	925,70	8,93.10 <sup>9</sup>	4,37.10 <sup>7</sup>
4850,00	52,14	1932,60	84,69	4,79.10 <sup>-5</sup>	915,81	8,96.10 <sup>9</sup>	4,74.10 <sup>7</sup>
4900,00	52,41	1942,29	83,76	4,76.10 <sup>-5</sup>	905,97	9,00.10 <sup>9</sup>	5,13.10 <sup>7</sup>
4950,00	52,67	1951,99	82,83	4,74.10 <sup>-5</sup>	896,17	9,04.10 <sup>9</sup>	5,55.10 <sup>7</sup>
5000,00	52,93	1961,68	81,90	4,71.10 <sup>-5</sup>	886,41	9,07.10 <sup>9</sup>	5,98.10 <sup>7</sup>
5050,00	53,19	1971,37	80,88	4,67.10 <sup>-5</sup>	877,66	9,11.10 <sup>9</sup>	6,45.10 <sup>7</sup>
5100,00	53,45	1981,06	79,86	4,64.10 <sup>-5</sup>	868,92	9,14.10 <sup>9</sup>	6,94.10 <sup>7</sup>
5150,00	53,71	1990,75	78,83	4,60.10 <sup>-5</sup>	860,20	9,17.10 <sup>9</sup>	7,45.10 <sup>7</sup>
5200,00	53,97	2000,44	77,81	4,57.10 <sup>-5</sup>	851,50	9,21.10 <sup>9</sup>	8,00.10 <sup>7</sup>
5250,00	54,24	2010,13	76,79	4,53.10 <sup>-5</sup>	842,81	9,24.10 <sup>9</sup>	8,57.10 <sup>7</sup>
5300,00	54,50	2019,82	75,77	4,50.10 <sup>-5</sup>	834,13	9,27.10 <sup>9</sup>	9,17.10 <sup>7</sup>
5350,00	54,76	2029,51	74,74	4,46.10 <sup>-5</sup>	825,46	9,30.10 <sup>9</sup>	9,80.10 <sup>7</sup>
5400,00	55,02	2039,20	73,72	4,43.10 <sup>-5</sup>	816,80	9,32.10 <sup>9</sup>	1,05.10 <sup>8</sup>
5450,00	55,28	2048,89	72,70	4,39.10 <sup>-5</sup>	808,14	9,35.10 <sup>9</sup>	1,11.10 <sup>8</sup>
5500,00	55,54	2058,58	71,68	4,36.10 <sup>-5</sup>	799,49	9,38.10 <sup>9</sup>	1,19.10 <sup>8</sup>
5550,00	55,81	2068,27	70,70	4,32.10 <sup>-5</sup>	791,34	9,40.10 <sup>9</sup>	1,26.10 <sup>8</sup>
5600,00	56,07	2077,96	69,72	4,28.10 <sup>-5</sup>	783,19	9,43.10 <sup>9</sup>	1,34.10 <sup>8</sup>
5650,00	56,33	2087,65	68,74	4,25.10 <sup>-5</sup>	775,05	9,45.10 <sup>9</sup>	1,42.10 <sup>8</sup>
5700,00	56,59	2097,35	67,77	4,21.10 <sup>-5</sup>	766,91	9,48.10 <sup>9</sup>	1,51.10 <sup>8</sup>
5750,00	56,85	2107,04	66,79	4,18.10 <sup>-5</sup>	758,76	9,50.10 <sup>9</sup>	1,60.10 <sup>8</sup>
5800,00	57,11	2116,73	65,81	4,14.10 <sup>-5</sup>	750,61	9,52.10 <sup>9</sup>	1,69.10 <sup>8</sup>
5850,00	57,37	2126,42	64,83	4,11.10 <sup>-5</sup>	742,46	9,54.10 <sup>9</sup>	1,79.10 <sup>8</sup>
5900,00	57,64	2136,11	63,86	4,07.10 <sup>-5</sup>	734,30	9,56.10 <sup>9</sup>	1,89.10 <sup>8</sup>
5950,00	57,90	2145,80	62,88	4,04.10 <sup>-5</sup>	726,12	9,58.10 <sup>9</sup>	1,99.10 <sup>8</sup>

6000,00	58,16	2155,49	61,90	$4,00 \cdot 10^{-5}$	717,93	$9,60 \cdot 10^9$	$2,10 \cdot 10^8$
6050,00	58,42	2165,18	60,78	$3,95 \cdot 10^{-5}$	711,12	$9,61 \cdot 10^9$	$2,21 \cdot 10^8$
6100,00	58,68	2174,87	59,66	$3,90 \cdot 10^{-5}$	704,28	$9,63 \cdot 10^9$	$2,33 \cdot 10^8$
6150,00	58,94	2184,56	58,54	$3,84 \cdot 10^{-5}$	697,39	$9,64 \cdot 10^9$	$2,45 \cdot 10^8$
6200,00	59,20	2194,25	57,42	$3,79 \cdot 10^{-5}$	690,46	$9,66 \cdot 10^9$	$2,57 \cdot 10^8$
6250,00	59,47	2203,94	56,30	$3,74 \cdot 10^{-5}$	683,48	$9,67 \cdot 10^9$	$2,70 \cdot 10^8$
6300,00	59,73	2213,63	55,18	$3,69 \cdot 10^{-5}$	676,45	$9,68 \cdot 10^9$	$2,83 \cdot 10^8$
6350,00	59,99	2223,32	54,06	$3,63 \cdot 10^{-5}$	669,37	$9,69 \cdot 10^9$	$2,97 \cdot 10^8$
6400,00	60,25	2233,01	52,94	$3,58 \cdot 10^{-5}$	662,23	$9,70 \cdot 10^9$	$3,11 \cdot 10^8$
6450,00	60,51	2242,71	51,82	$3,53 \cdot 10^{-5}$	655,03	$9,71 \cdot 10^9$	$3,26 \cdot 10^8$
6500,00	60,77	2252,40	50,70	$3,48 \cdot 10^{-5}$	647,75	$9,72 \cdot 10^9$	$3,41 \cdot 10^8$
6550,00	61,03	2262,09	49,62	$3,42 \cdot 10^{-5}$	640,92	$9,73 \cdot 10^9$	$3,56 \cdot 10^8$
6600,00	61,30	2271,78	48,54	$3,37 \cdot 10^{-5}$	634,02	$9,74 \cdot 10^9$	$3,72 \cdot 10^8$
6650,00	61,56	2281,47	47,46	$3,32 \cdot 10^{-5}$	627,05	$9,74 \cdot 10^9$	$3,88 \cdot 10^8$
<b>6700,00</b>	<b>61,82</b>	<b>2291,16</b>	<b>46,38</b>	<b><math>3,27 \cdot 10^{-5}</math></b>	<b>620,00</b>	<b><math>9,75 \cdot 10^9</math></b>	<b><math>4,05 \cdot 10^8</math></b>

TABLE D.6: Données thermophysiques de l'aluminium utilisées dans les modèles développés dans ce mémoire.



## Annexe E

### *The Critical Temperature of Aluminum*

## The Critical Temperature of Aluminum

V. Morel · A. Bultel · B. G. Chéron

Received: 23 January 2009 / Accepted: 19 October 2009 / Published online: 4 November 2009  
© Springer Science+Business Media, LLC 2009

**Abstract** The critical temperature,  $T_c$ , of metals is a fundamental point when vaporization due to high energy exchanges occurs. Although aluminum is a metal often studied as a benchmark for theories, its critical temperature is not known with a high degree of accuracy. Its determination by experiment is difficult as a result of its high value. This paper reviews the existing data and proposes new ones resulting from recent measurements of particular physical properties and recent theoretical approaches. These new estimates lead to the recommended value of  $T_c = (6700 \pm 800)$  K.

**Keywords** Aluminum · Cohesive enthalpy · Critical point · Critical temperature · Enthalpy of vaporization · Equation of state · Surface tension

### 1 Introduction

A relevant way for determining the *in situ* composition of a solid sample is to use laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS). This involves the irradiation of the sample by a sufficiently powerful laser, leading to the formation of a plasma, followed by analysis by time-resolved emission spectroscopy. This technique has already been used in the case of tokamaks to probe the edge plasma [1], and developments are currently in progress to verify the carbon balance in fusion machines [2]. LIBS presents an important problem which prevents the technique from being universal: it requires a comparison of the experimental spectra with others performed earlier in controlled conditions with known test sample compositions. The only way to avoid relying on a representative databank is to model the complete situation. The model has to describe

---

V. Morel · A. Bultel (✉) · B. G. Chéron  
CORIA, UMR CNRS 6614, Université de Rouen, 76821 Saint-Etienne du Rouvray, France  
e-mail: arnaud.bultel@coria.fr

the plasma formation, the kinetics mechanism, heating of the sample, its phase change, and the interaction with laser light [3].

In spite of the evaporation of the material and the diffusion of energy inside the sample, the surface temperature can reach the critical point. As soon as the critical temperature,  $T_c$ , is reached, the behavior of the surface changes significantly: since the liquid → gas transition does not occur anymore, a description of the edge of the sample by using the concept of a surface with a discontinuity in terms of specific mass is questionable. The critical point is therefore an upper limit of the traditional treatment of the sample in an LIBS situation.

We are currently developing a complete model of the behavior of a sample under nanosecond laser light irradiation based on our experience in modeling the thermal and chemical behavior of non-equilibrium plasmas [4,5]. Aluminum has been chosen as the sample material, since a lot of thermodynamic data have been determined concerning this element up to high-temperature levels. The critical temperature is conversely less well known. As a result, the objectives of the present paper are to review the existing estimates of  $T_c$  for aluminium; to propose other estimates resulting from recent data concerning the enthalpy of vaporization, the cohesive enthalpy, the surface tension, and the equation of state; and finally to recommend a value.

## 2 Review of the Existing Estimates of $T_c$ for Aluminum

The critical temperature,  $T_c$ , for aluminum has never been experimentally determined. The different estimates (see Table 1) range between 5400 K and 9500 K and have been obtained using different methods. These methods can be divided into three groups. The first one (denoted as 1 in Table 1) concerns the equation of state. The second one (denoted as 2) is based on the use of rules assumed to be the same, more or less, for all liquid metals. The third one (denoted as 3) consists of extrapolating thermodynamic data experimentally obtained at lower temperature conditions. The related mean values are 8070 K for type 1, 7260 K for type 2, and 5950 K for type 3. The mean-type value is 7090 K whereas the mean value derived from all data of Table 1 is 7310 K.

The plot derived from Table 1 illustrates how  $T_c$  has evolved with time (see Fig. 1). This shows that the early estimates belong to three groups: group A (before 1980), group B (between 1990 and 2000), and group C (since 2006). The mean values are 7530 K, 7400 K, and 6550 K, respectively, and therefore, in the vicinity of the global mean value. With time, we can conclude that  $T_c$  corresponds to lower and lower values.

Recently, a series of experiments has been performed by Korobenko et al. [24] to determine the electrical resistivity of aluminum passing the critical point. This work is based on the observation of the explosion of a wire suddenly heated by a pulse of current. Underlying the difficulty of performing experiments in very high temperature conditions, this determination necessitates an equation of state: the SESAME library has been used [25]. As expected, the curves given in the paper emphasize an important increase of the resistivity passing the critical point (7000 K to 8000 K). Unfortunately, an equation of state being used, an evaluation of  $T_c$  cannot be derived from this experiment.

**Table 1** Early estimates of the critical temperature  $T_c$  for aluminum (type of method and group: see Sect. 2)

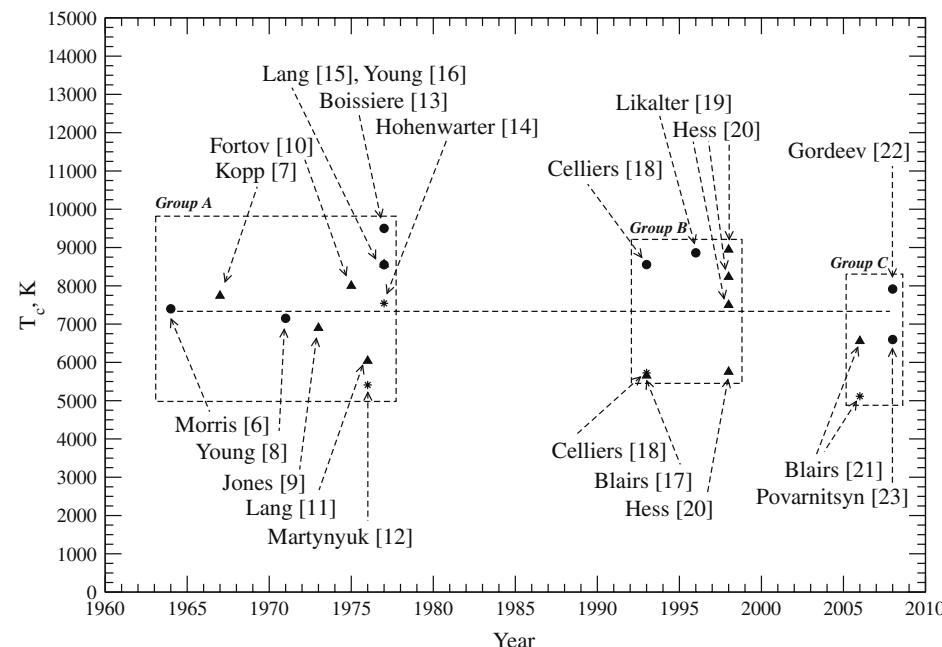
Value (K)	Year	Reference	Method	Type of method	Group
7400	1964	Morris [6]	Corresponding states	1	A
7740	1967	Kopp [7]	Enthalpy of vaporization	2	
7151	1971	Young [8]	Equation of state	1	
6900	1973	Jones [9]	Model of pair potential	2	
8000	1975	Fortov [10]	Kopp-Lang rule	2	
6040	1976	Lang [11]	Surface tension	2	
5410	1976	Martynyuk [12]	Wire explosion	3	
9502	1977	Boissière [13]	Equation of state	1	
7543	1977	Hohenwarter [14]	Planck-Ridel vapour pressure	3	
8560	1977	Lang [15]	Enthalpy of vaporization	2	
8550	1977	Young [16]	Equation of state	1	
5654	1993	Blairs [17]	Sound velocity	2	B
8556	1993	Celliers [18]	Equation of state	1	
5726	1993	Celliers [18]	Isobaric measurements	3	
8860	1996	Likalter [19]	Equation of state	1	
5754	1998	Hess [20]	Guldberg rule	2	
8232	1998	Hess [20]	Kopp-Lang rule	2	
7499	1998	Hess [20]	Goldstein rule	2	
8944	1998	Hess [20]	Vapor pressure curves	2	
5115	2006	Blairs [21]	Surface tension	3	C
6557	2006	Blairs [21]	Guldberg rule	2	
7917	2008	Gordeev [22]	Equation of state	1	
6595	2008	Povarnitsyn [23]	Equation of state	1	

The same remark has to be made concerning the paper of Wu and Shin [26] which treats the determination of the absorption coefficient  $\alpha_\lambda$  near the critical point. Using the Drude model to determine  $\alpha_\lambda$  and starting from the results of Korobenko et al., the use of the equation of state for the determination of the temperature prevents an estimate of  $T_c$ .

Finally, another estimate of  $T_c$  is given in the work of Mazhukin et al. [27]. The value proposed (8000 K) belongs to the domain of high values, but its source is not cited and has not been taken into account in this review.

### 3 New Estimates of $T_c$ for Aluminum

In the following, four methods based on recent measurements of physical properties and recent theoretical approaches are used to estimate  $T_c$ .



**Fig. 1** Evolution in time of estimates of the critical temperature  $T_c$  of aluminum. The dashed line is located at the mean value 7310 K. Circles, triangles, and stars are related to the results obtained from methods 1 (mean value 8070 K), 2 (mean value 7260 K), and 3 (mean value 5950 K), respectively

### 3.1 Enthalpy of Vaporization

Considering the equilibrium vapor pressure of aluminum, Hess [20] discusses the validity of the interpolations allowing the matching of the experimental data up to the boiling point. The general equation of Dupré is adopted:

$$\ln(p_v/p_0) = A + B/T + C \ln(T/T_0) \quad (1)$$

with  $p_0 = 1$  bar and  $T_0 = 1$  K. The constants  $A$ ,  $B$ , and  $C$  are listed in Table 2.

From this equality, we can derive the boiling point  $T_b$ , the enthalpy of ebullition  $\Delta h_b$  (i.e., the enthalpy of vaporization under atmospheric pressure) as well as its derivative with respect to temperature in the form,

$$d\Delta h_b/dT = CR_g \quad (2)$$

by using the Clausius–Clapeyron equation,  $R_g$  being the universal gas constant. These data are also given in Table 2.

$T_c$ ,  $T_b$ ,  $\Delta h_b$ , and  $d\Delta h_b/dT$  are linked together by the Meyra et al. [30] or Watson [31] equations, leading to the following form:

$$T_c = T_b - Z_c \Delta h_b / (d\Delta h_b/dT) \quad (3)$$

**Table 2** Critical temperatures derived from the treatment of the enthalpy of vaporization.

Constants of Eq. 1	Reference	$T_b$ (K)	$\Delta h_b$ (J·mol <sup>-1</sup> )	$d\Delta h_b/dT$ (J·mol <sup>-1</sup> ·K <sup>-1</sup> )	$T_c$ (K) Eq. 3	$T_c$ (K) Eq. 4
$A = 21.75$	[28]	2730	290.88	-8.314	12946	7626
$B = -37716$ K					16025	
$C = -1$						
$A = 13.62$	[29]	2740	310.34	0	$\infty$	8899
$B = -37327$ K					$\infty$	
$C = 0$						
$A = 24.37$	[29]	2800	293.84	-10.919	10658	7504
$B = -39020$ K					13026	
$C = -1.3133$						

The two values given for  $T_c$  correspond to the use of Eq. 3 with  $Z_c = 0.292$  (Meyra et al. [30]) and  $Z_c = 0.38$  (Watson [31])

with  $Z_c = 0.292$  for Meyra et al. and  $Z_c = 0.38$  for Watson.

On the other hand, Fish and Lielmezs [32] have worked on liquid metals and have extracted from experimental results a correlation which can be presented as follows, after some algebra:

$$T_c = T_b \{2[1 - T_b(d\Delta h_b/dT)/\Delta h_b]\}/\{1 - 2T_b(d\Delta h_b/dT)/\Delta h_b - n + m\} \quad (4)$$

where  $n = 0.20957$  and  $m = -0.17464$ .

We observe that  $T_b$ ,  $\Delta h_b$ , and  $d\Delta h_b/dT$  derived from Eqs. 1 and 2 and the Clausius–Clapeyron equation can be used to calculate  $T_c$  with Eqs. 3 and 4. Table 2 presents the values of  $T_c$  obtained by this way. It is clear that Eq. 3 overestimates the critical temperatures obtained in the past and displayed in Table 1. Therefore, Eq. 3 has to be rejected. Conversely, the Fish and Lielmezs equation is better: the values obtained (7500 K to 8900 K) belong to the range of high values and are in good accord with previous determinations. Alcock et al. [29] indicate that the most precise set in Table 2 is the third one; therefore, the value of 7504 K has to be particularly considered. The first set is less precise, but the value derived for  $T_c$  is very close to the previous one. The second set leads to a constant  $\Delta h_b$  near  $T_b$ : this behavior does not obey the usual law concerning the enthalpy of vaporization. This set has to be therefore also rejected as well as the related critical temperature.

Notice that Roman et al. [33] modified by Velasco et al. [34] give a correlation formula different from those of Meyra et al. and Watson, but it leads to the same form given by Eq. 3 for  $T_c$ : the resulting values are therefore the same as those of Table 2.

### 3.2 Cohesive Enthalpy

Recently, Kaptay [35, 36] has given a unified model linking the cohesive enthalpy of a liquid  $h_l^c(T)$  with the melting point  $T_m$  of alkali metals. This model also yields fairly

good results for other metals. The cohesive enthalpy is defined as the energy existing in the liquid resulting from the mutual atomic attraction, which vanishes when the critical temperature is reached. As a result,

$$h_l^c(T) = h_l(T) - h_l(T_c) \quad (5)$$

Kaptay gives its general evolution towards  $T_m$ :

$$h_l^c(T_m) = -q_1 R_g T_m - q_2 (R_g T_m)^2 \quad (6)$$

with  $q_1 = 26.3 \times 10^{-4}$  and  $q_2 = -2.62 \times 10^{-4} \text{ mol} \cdot \text{J}^{-1}$ .

Over the range  $933 \text{ K} \leq T \leq 4000 \text{ K}$ , Gathers [37] has derived the evolution of the specific enthalpy with temperature from experiments. It leads to an evolution of  $h_l$  according to

$$h_l(T) = 1319.7 + 28.881T + 6.2284 \times 10^{-4}T^2 \quad (7)$$

The measurements of Gathers were performed under rather high-pressure conditions ( $p = 0.3 \text{ GPa}$ ). Nevertheless, the same measurements performed under lower pressure conditions ( $p = 0.2 \text{ GPa}$ ) have given similar results [38]: the pressure seems to have a negligible influence on  $h_l$ . As a result, Eq. 7 has been used directly for calculating  $h_l^c(T_m)$  from Eqs. 5 and 6, the latter having been established under atmospheric pressure. Moreover, assuming that Eq. 7 is correct for a range of temperature extending up to  $T_c$ , the resulting value for the critical temperature is

$$T_c = 6548 \text{ K} \quad (8)$$

This value is remarkably close to that of Povarnitsyn [23].

### 3.3 Surface Tension

Molina et al. [39] have performed measurements of the surface tension of molten aluminum in particularly clean conditions of the surface, i.e., by minimizing the influence of adsorbed oxygen by working at high temperature. They have brought to light an increase of the surface tension when the influence of oxygen is reduced. The values obtained are  $\gamma(1375 \text{ K}) = 850 \text{ mN} \cdot \text{m}^{-1}$  with a slope  $d\gamma/dT = -0.185 \text{ mN} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ . Assuming a constant slope over the range  $[T_m, 1375 \text{ K}]$ , they have deduced  $\gamma(T_m) = 940 \text{ mN} \cdot \text{m}^{-1}$ .

The surface tension being zero at the critical temperature  $T_c$ , linking the surface tension and  $T_c$  can provide an estimate of the latter temperature. A lot of work has been devoted to the problem of the link between  $\gamma$  and  $T_c$ . Since the work of Binder [40], a general trend,

$$\gamma(T) = \gamma_0 (1 - T/T_c)^n \quad (9)$$

with  $n = 1.26$  is more or less accepted. In the case of hydrocarbons, the exponent is 1.244 [41] and for nitrogen,  $n = 1.27$  [42]. For quantum fluids such as helium,  $n = 1.289$  [43]. In the case of liquid metals, Eustathopoulos et al. [44] have proposed a model of  $d\gamma/dT$ : their results are very well correlated with the experimental ones obtained by Molina et al. Unfortunately, their model is based on assumptions which are valid only for temperatures around the melting point: consequently, their model cannot be applied up to  $T_c$ .

In more recent work, Digilov [45] has developed another model of the evolution with temperature of the surface tension  $\gamma$  leading to the following equation:

$$\gamma(T) = \gamma(T_m) [1 + 0.13(1 - T/T_m)]^{1.67} \quad (10)$$

Therefore,

$$(d\gamma/dT) T_m = -0.217\gamma(T_m)/T_m \quad (11)$$

Considering the reference value  $\gamma(T_m) = 940 \text{ mN} \cdot \text{m}^{-1}$ , Eq. 11 leads to  $d\gamma/dT = -0.219 \text{ mN} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$  which is in good agreement with the work of Molina et al. By equating the surface tension to zero when  $T = T_c$ , the critical temperature  $T_c = 8.69 T_m = 8114 \text{ K}$  can be deduced from Eq. 10. This value belongs to the high range of critical temperatures displayed in Fig. 1. Digilov adopts assumptions which are valid only in the vicinity of the melting point: these assumptions explain why the slope  $d\gamma/dT$  is so well correlated with the experiment and cannot be used to derive  $T_c$ .

Assuming that  $n = 1.26$  in Eq. 9, a critical temperature of

$$T_c = 7164 \text{ K} \quad (12)$$

is deduced from the results of Molina et al. obtained for  $T = 1375 \text{ K}$ .

### 3.4 Equation of State

Different equations of state for aluminum have been established recently, and we have tested the more reliable among them for the purpose of evaluating the critical temperature. The equation of Chiew et al. [46], initially developed for the case of chain-like fluids and polymers, has to be mentioned. It is based on a first-order variational perturbation theory applied to molecules considered as chains of atoms interacting with each other according to a Lennard–Jones potential (called the PLJC method for the *perturbed Lennard–Jones chain* method). The resulting equation of state is

$$p/(nk_B T) = f_1(\eta) + f_2(\eta) \quad (13)$$

where  $n$  is the number density of atoms,  $f_1$  is the hard-sphere reference part,  $f_2$  is the attractive perturbation part (proportional to  $n^3$ ), and  $\eta$  is the hard-segment packing fraction depending on the number density  $n$  and the temperature  $T$ . The parts  $f_1$  and  $f_2$  depend on the usual two Lennard–Jones parameters  $\sigma$  and  $\varepsilon$ .

**Table 3** Early estimates of the critical density  $\rho_c$  and pressure  $p_c$  for aluminum

$\rho_c$ ( $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$ )	$p_c$ (GPa)	Reference	Year	Type of method
600	0.415	Morris [6]	1964	1
690	0.546	Young [8]	1971	1
1030	—	Jones [9]	1973	2
640	0.447	Fortov [10]	1975	2
895	0.938	Boissière [13]	1977	1
—	0.246	Hohenwarter [14]	1977	3
420	0.182	Young [16]	1977	1
685	—	Celliers [18]	1993	1
280	0.468	Likalter [19]	1996	1
430	0.473	Hess [20]	1998	2
660	0.467	Gordeev [22]	2008	1
698	0.399	Povarnitsyn [23]	2008	1

This approach gives results in good agreement with the experiment and has been consequently applied recently by Mousazadeh and Ghanadi Marageh [47] to the case of liquid metals. At critical conditions, the first and second derivatives of the pressure with respect to the density at constant temperature are equal to zero. For aluminum, we have therefore deduced

$$T_c = 5698 \text{ K} \quad (14)$$

and  $\rho_c = 566 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$  and  $p_c = 0.393 \text{ GPa}$ . These values for critical density and pressure are in good agreement with those reported in Table 3.

Other approaches have been proposed combining a hard-sphere chain equation of state perturbed by a van der Waals attraction term and applied to some liquid metals, for instance, by Eslami [48]. In this case, the equation of state still presents the form of Eq. 13, but with a repulsive part proportional to  $n$ . The parts  $f_1$  and  $f_2$  also depend on two parameters: a reference radius and a reference energy denoted  $\sigma$  and  $\varepsilon$ , respectively, as in the case of the Lennard–Jones approach.

The metals Li, Na, K, Ru, Ce, Hg, Sn, Pb, and Bi have been treated by either the PLJC method or the perturbed van der Waals method. The comparison of  $\sigma$  and  $\varepsilon$  between both methods shows that the reference energy  $\varepsilon$  is approximately the same, whereas the reference radius  $\sigma$  is systematically lower when using the van der Waals method. The latter has not yet been tested on aluminum: we have consequently chosen to adopt the value of  $\varepsilon$  given in [47]. The value of  $\sigma$  has been evaluated by using the equation of state (Eq. 13) such that the specific mass of liquid aluminum at the melting point derived from the equation of state is equal to the reference value ( $2377 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$ ) recommended by Assael et al. [49]. We have obtained  $\sigma = 2.52 \times 10^{-10} \text{ m}$  which is lower than the value proposed by [47] as for the other metals.

**Table 4** New estimates of the critical temperature  $T_c$  for aluminum

$T_c$ (K)	Method	Type of method
5698	Equation of state	1
6063	Equation of state	1
6548	Cohesive enthalpy	2
7164	Surface tension	3
7504	Enthalpy of vaporization	3
7626	Enthalpy of vaporization	3

Finally, the critical point estimated with the perturbed van der Waals method corresponds to the following conditions:

$$T_c = 6063 \text{ K} \quad (15)$$

$\rho_c = 556 \text{ kg} \cdot \text{m}^{-3}$  and  $p_c = 0.373 \text{ GPa}$ . The coordinates of the critical point are also well correlated with the data given in Table 3.

#### 4 Discussion

In Sect. 3, we have estimated  $T_c$  for aluminum with different methods. Table 4 summarizes these estimates ordered in increasing values. We see that passing successively from a method of type 1 to type 3 leads to an increase of  $T_c$ , contrary to the case of the early estimates. Therefore, we cannot conclude that one method is more reliable than another: all methods have consequently to be developed in order to refine the estimate of  $T_c$ . This conclusion is reinforced by the analysis of Table 3: except for the results of Jones [9], Boissière and Fiorese [13], Hohenwarter et al. [14], Young [16], Celliers and Ng [18], and Likalter [19], our estimates of  $\rho_c$  and  $p_c$  are in good agreement with the existing values derived not only from the use of method 1 (equation of state), but also from method 2.

The mean value obtained in this work is 6770 K, confirming the estimates of the recent group C and the decrease of the estimates of  $T_c$  with time. Our work is based globally on recent data: we can consequently combine our results with those of group C and deduce a value of 6680 K. For lack of other estimates, and waiting for a direct measurement of  $T_c$ , the recommended value is therefore  $T_c = 6700 \text{ K}$ .

The uncertainty of the previous value has to be given. The standard deviation of the group of values obtained in Table 4 and in group C is 800 K. We assume that this standard deviation is a good estimate of the uncertainty even if these values are not related statistically. As a conclusion, we can state that  $T_c = (6700 \pm 800) \text{ K}$ .

#### 5 Conclusion

The critical temperature of aluminum has not been measured directly so far, and it has been the subject of a lot of estimates in the past. In this work, we have reviewed the existing values and shown that the later the estimate, the smaller the value. By analyzing recent data concerning aluminum's enthalpy of vaporization, cohesive enthalpy,

surface tension, and equation of state, we have deduced six new estimates of  $T_c$  confirming the global evolution with time put forward in our review. In addition, they are in good agreement with the values obtained for the last 3 years. Finally, the recommended critical temperature of aluminum, obtained as the average of our own results and the latter, is

$$T_c = (6700 \pm 800) \text{ K}$$

**Acknowledgment** The authors wish to thank the “Région Haute-Normandie” in France for its financial support (contract no 922/2000A/00112).

## References

1. I.L. Beigman, G. Kocsis, A. Popieszczyk, L.A. Vainshtein, *Plasma Phys. Control Fusion* **40**, 1689 (1998)
2. C. Grisolia, A. Semerok, J.M. Weulersse, F. Le Guern, S. Fomichev, F. Brygo, P. Fichet, P.Y. Thro, P. Coad, N. Bekris, M. Stamp, S. Rosanvallon, G. Piazza, *J. Nucl. Mater.* **363**(365), 1138 (2007)
3. V. Morel, A. Bultel, B.G. Chéron, in *Proceedings of Escampig XIX*, Granada, Spain (2008)
4. A. Bultel, B. van Ootegem, A. Bourdon, P. Vervisch, *Phys. Rev. E* **65**, 046406 (2002)
5. A. Bultel, B.G. Chéron, A. Bourdon, O. Motapon, I.F. Schneider, *Phys. Plasmas* **13**, 043502 (2006)
6. E. Morris, *An Application of the Theory of Corresponding States to the Prediction of the Critical Constants of Metals*, Report No. AWRE/0-67/64 1-17 (1964)
7. I.Z. Kopp, *Russ. J. Phys. Chem.* **41**, 782 (1967)
8. D.A. Young, B.J. Alder, *Phys. Rev. A* **3**, 364 (1971)
9. H.D. Jones, *Phys. Rev. A* **8**, 3215 (1973)
10. V.E. Fortov, A.N. Dremin, A.A. Leontiev, *Teplofiz. Vys. Temp.* **13**, 1072 (1975)
11. G. Lang, *Z. Metallkd.* **67**, 549 (1976)
12. M.M. Martynyuk, O.G. Pantaleichuk, *Teplofiz. Vys. Temp.* **14**, 1201 (1976)
13. C. Boissière, G. Fiorese, *Rev. Phys. Appl.* **12**, 857 (1977)
14. J. Hohenwarter, E. Schwarz-Bergkampf, *Heft* **3**, 269 (1977)
15. G. Lang, *Z. Metallkd.* **68**, 213 (1977)
16. D.A. Young, *A Soft-Sphere Model for Liquid Metals*, Report No. UCRL-52352 1-15 (1977)
17. S. Blairs, M.H. Abassi, *Acustica* **79**, 64 (1993)
18. P. Celliers, A. Ng, *Phys. Rev. A* **47**, 3547 (1993)
19. A.A. Likalter, *Phys. Rev. B* **53**, 4386 (1996)
20. H. Hess, *Z. Metallkd.* **89**, 388 (1998)
21. S. Blairs, M.H. Abassi, *J. Colloid Interface Sci.* **304**, 549 (2006)
22. D.G. Gordeev, L.F. Gudarenko, M.V. Zhernokletov, V.G. Kudel'kin, M.A. Mochalov, *Combust. Expl. Shock Waves* **44**, 177 (2008)
23. M.E. Povarnitsyn, K.V. Khishchenko, P.R. Levashov, *Int. J. Impact Eng.* **35**, 1723 (2008)
24. V.N. Korobenko, A.D. Rakhel, A.I. Savvatimski, V.E. Fortov, *Phys. Rev. B* **71**, 014208 (2005)
25. J.D. Johnson, The SESAME database, in *Proceedings of the 12th Symposium on Thermophysical Properties*, Boulder, CO, USA (1994)
26. B. Wu, Y.C. Shin, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 111902 (2006)
27. V.I. Mazhukin, V.V. Nossov, I. Smurov, *Thin Solid Films* **453–454**, 353 (2004)
28. T. Iida, R.I.L. Guthrie, *The Physical Properties of Liquid Metals* (Clarendon Press, Oxford, 1988)
29. C.B. Alcock, V.P. Itkin, M.K. Horrigan, *Can. Metall. Q.* **23**, 309 (1984)
30. A.G. Meyra, V.A. Kuz, G.J. Zaragoza, *Fluid Phase Equilib.* **218**, 205 (2007)
31. K.M. Watson, *Ind. Eng. Chem.* **35**, 398 (1943)
32. L.W. Fish, J. Lielmezs, *Ind. Eng. Chem. Fundam.* **14**, 248 (1975)
33. F.L. Roman, J.A. White, S. Velasco, A. Mulero, *J. Chem. Phys.* **123**, 124512 (2005)
34. S. Velasco, F.L. Roman, J.A. White, A. Mulero, *Fluid Phase Equilib.* **244**, 11 (2006)
35. G. Kaptay, *Mater. Sci. Eng. A* **495**, 19 (2008)
36. G. Kaptay, *Mater. Sci. Eng. A* **501**, 255 (2009)

37. G.R. Gathers, *Int. J. Thermophys.* **4**, 209 (1983)
38. G.R. Gathers, M. Ross, *J. Non-Cryst. Solids* **61**(62), 59 (1984)
39. J.M. Molina, R. Voytovych, E. Louis, N. Eustathopoulos, *Int. J. Adhes. Adhes.* **27**, 394 (2007)
40. K. Binder, *Phys. Rev. A* **25**, 1699 (1982)
41. K. Srivanasan, N.E. Wijeyasundara, *Int. J. Thermophys.* **19**, 1473 (1998)
42. A.P. Wemhoff, V.P. Carey, *Int. J. Thermophys.* **27**, 413 (2006)
43. Y.H. Huang, P. Zhang, R.Z. Wang, *Int. J. Thermophys.* **29**, 1321 (2008)
44. N. Eustathopoulos, B. Drevet, E. Ricci, *J. Cryst. Growth* **191**, 268 (1998)
45. R.M. Digilov, *Int. J. Thermophys.* **23**, 1381 (2002)
46. Y.C. Chiew, D. Chang, J. Lai, G.H. Wu, *Ind. Eng. Chem. Res.* **38**, 4951 (1999)
47. M.H. Mousazadeh, M. Ghanadi Marageh, *J. Phys. Condens. Matter* **18**, 4793 (2006)
48. H. Eslami, *J. Nucl. Mater.* **336**, 135 (2005)
49. M.J. Assael, K. Kakosimos, R.M. Banish, J. Brillo, I. Egry, R. Brooks, P.N. Quested, K.C. Mills, A. Nagashima, Y. Sato, W.A. Wakeham, *J. Phys. Chem. Ref. Data* **35**, 285 (2006)

## Annexe F

*Modeling of thermal and chemical non-equilibrium in a laser-induced aluminum plasma by means of a Collisional-Radiative model*



## Modeling of thermal and chemical non-equilibrium in a laser-induced aluminum plasma by means of a Collisional-Radiative model

V. Morel <sup>\*</sup>, A. Bultel <sup>\*</sup>, B.G. Chéron

CORIA, UMR CNRS 6614, Université de Rouen, Site Universitaire du Madrillet, Avenue de l'Université, 76801 Saint-Etienne du Rouvray Cedex, France

### ARTICLE INFO

#### Article history:

Received 14 June 2010

Accepted 4 August 2010

Available online 12 August 2010

#### Keywords:

Aluminum

Collisional-Radiative model

Laser-induced plasma

Non-equilibrium plasma

LIBS

### ABSTRACT

A 0D numerical approach including a Collisional-Radiative model is elaborated in the purpose of describing the behavior of the nascent plasma resulting from the interaction between a 4 ns/65 mJ/532 nm Q-switched Nd:YAG laser pulse and an aluminum sample in vacuum. The heavy species considered are Al, Al<sup>+</sup>, Al<sup>2+</sup> and Al<sup>3+</sup> on their different excited states and free electrons. The translation temperatures of free electrons and heavy species are assumed different ( $T_e$  and  $T_A$  respectively). Numerous elementary processes are accounted for as electron impact induced excitation and ionization, elastic collisions, multiphoton ionization and inverse Bremsstrahlung. Atoms passing from the sample to gas phase are described by using classical vaporization theory so that the surface temperature is arbitrarily limited to values less than the critical point one at 6700 K. The laser flux density considered in the study is therefore moderate with a fluence lower than  $7 \text{ J cm}^{-2}$ .

This model puts forward the major influence of multiphoton ionization in the plasma formation, whereas inverse Bremsstrahlung turns out to be quasi negligible. The increase of electron temperature is mainly due to multiphoton ionization and  $T_e$  does not exceed 10,000 K. The electron induced collisions play an important role during the subsequent phase which corresponds to the relaxation of the excited states toward Boltzmann equilibrium. The electron density reaches its maximum during the laser pulse with a value  $\approx 10^{22}, 10^{23} \text{ m}^{-3}$  depending highly on the sample temperature. The ionization degree is of some percents in our conditions.

© 2010 Elsevier B.V. All rights reserved.

### 1. Introduction

Beyond its practical interest, laser-matter interaction in the case of nanosecond pulses is a full research area and is far from being completely understood. From this point of view, Aragon and Aguilera did recently a very interesting review [1] where they pointed out some outstanding works which concern particularly the early stage of the interaction. The early stage mentioned has to be generally accepted as related to time scales lower than some hundreds of nanoseconds. This definition results from typical delay times at which Laser-Induced Breakdown Spectroscopy (LIBS) measurements are usually performed [2]. This phase is characterized by the emission of both intense continuum and lines corresponding to deexcitation of highly excited states of multicharged ions. Electron density  $n_e$  and temperature  $T_e$  are therefore both high. For example in vacuum, Liu et al. [3] deduced that  $n_e \approx 10^{24} \text{ m}^{-3}$  and  $T_e \approx 15,000 \text{ K}$  in the case of a 3 ns laser pulse with  $2 \times 10^{13} \text{ W m}^{-2}$  on silicon at a 30 ns delay time. Experiments performed at so early delay times are very scarce. We

can cite experiments performed on titanium in similar conditions by De Giacomo [4], or experiments due to Diwakar and Hahn [5] and performed in gases. In the latter case, higher orders of magnitude for  $n_e$  and  $T_e$  have been highlighted.

The duration of laser-matter interaction depends on the pulse duration itself. In the case of a nanosecond pulse, the related time scale is largely shorter than the relaxation times. In addition, the energy released to the sample is high: all these conditions lead to an initial strong non-equilibrium [6] and the situation evolves subsequently until equilibrium is obtained. The open question is then to know if the equilibrium is fulfilled long after the end of the pulse.

This question is important because one assumes equilibrium in the general treatment of the LIBS signals [7]. Some works have been devoted to the criticism of criteria usually adopted to estimate if equilibrium is fulfilled [8]: these works suggest that such criteria are not appropriate. In these conditions, the best way to assess if the plasma is in equilibrium or not is to develop a complete time dependent modeling.

Some numerical codes have been elaborated with this aim in view and offer illustrations of general plasma modelings and numerical simulations reviewed by van Dijk et al. [9]. The codes developed so far may be arbitrarily divided in three groups according to the degree of attention paid to the numerical treatment of the plasma. The first one concerns codes based on a hydrodynamic approach of the plasma

\* Corresponding authors.

E-mail addresses: [morel@coria.fr](mailto:morel@coria.fr) (V. Morel), [arnaud.bultel@coria.fr](mailto:arnaud.bultel@coria.fr) (A. Bultel).  
URL: <http://www.coria.fr> (V. Morel).

phase, including sample heating equations. In this group, we can cite the work of Mazhukin et al. [10]. The second group considers plasma species interacting with each other and with the laser light. The thermal non-equilibrium between electrons and heavy species may be or not taken into account: works of Amoruso [11] and of Bogaerts and Chen [12] belong to this group. The third group develops more detailed studies involving numerous electronic excited states which can be partially or totally merged (Mazhukin et al. [13], Weyl and Rosen [14]) when they are sufficiently close energetically to each other. For example, it is the case of the work of Babushok et al. [15].

The latter type of study can be generalized by reducing the number of merged states in order to extend the application range of the model to situations farther from equilibrium: this way provides the only relevant approach and has been earlier successfully applied to other physical situations as atmospheric entries [16]. It consists in developing a Collisional-Radiative (CR) model where the individual behavior of the excited states is governed by collisional and radiative elementary processes without any equilibrium assumptions (see Gornushkin and Panne [17]). The numerical cost of such a CR model can be high: this explains actually why such an approach is generally developed in the case of moderately complex flows [18].

The early phase of laser-induced plasmas offers an ideal case of simple flow inasmuch the mass transport can be assumed to be perpendicular to the sample surface. A CR model has been therefore elaborated. The present paper reports the elaboration of this model which describes the creation phase of a laser-induced plasma on a solid sample and the subsequent relaxation in relation with previous experimental works performed in our laboratory on aluminum.

The test-case is described and the elementary processes at work are listed. No equilibrium assumption is stated, except for translation energy supposed to follow a Maxwellian distribution at different temperatures for electrons and heavy particles. A structured analysis is developed afterward in the purpose of describing thoroughly the breakdown mechanism: translation temperatures, population density and excitation temperature temporal evolutions are particularly discussed. We put forward the fundamental role of the multiphoton ionization in the heating process of the electron gas in the plasma and in the electron source itself as well.

## 2. Test-case

The test-case chosen corresponds to an aluminum target in interaction with a  $\tau=4\text{ ns}/E=65\text{ mJ}$  Q-switched Nd:YAG laser pulse at  $\lambda=532\text{ nm}$  in vacuum. In these conditions, two important thresholds of fluence can be experimentally pointed out: the first one corresponds to the minimum value  $F_0$  required to observe the breakdown. For aluminum with nanosecond pulses, Cabalin and Laserna [19] have obtained  $F_0=1.0\text{ J cm}^{-2}$  at  $\lambda=1064\text{ nm}$  and  $F_0=1.3\text{ J cm}^{-2}$  at  $\lambda=532\text{ nm}$ , whereas Fishburn et al. [20] have measured  $F_0=1.5\text{ J cm}^{-2}$  at  $544\text{ nm}$ . At higher fluence, experiments exhibit a second threshold  $F_1$  over which strong ejections of droplets are observed: this phenomenon is called “explosive” ejection or explosion phase. Porneala and Willis [21] and Fishburn et al. have obtained  $F_1=5.2\text{ J cm}^{-2}$  at  $1064\text{ nm}$ , and  $F_1=7\text{ J cm}^{-2}$  at  $544\text{ nm}$ , respectively. Based on these works, we can assume that  $F_0 \approx 1.3\text{ J cm}^{-2}$  and  $F_1 \approx 7\text{ J cm}^{-2}$  at  $\lambda=532\text{ nm}$ .

A correct description of the explosion phenomenon requires to consider a two-phase flow, which is quite beyond the frame of the CR model reported in the present paper. Therefore the applicability of our model is limited to the fluence range  $[F_0, F_1]$ . Future comparisons with experimental results will be performed under these conditions. For instance, in our conditions, the fluence is  $8.3\text{ J cm}^{-2}$  when the laser beam is focused onto a  $1\text{ mm}$  in diameter spot. For higher diameter, the resulting fluence can be expected as sufficiently low to avoid the sample explosion in liquid droplets.

## 3. Description of the model

The plasma modeling treated in the present paper is based on a two-temperatures approach assumed relevant even for very short time scales. This approach is similar to those developed by Weyl and Rosen [14] and Mazhukin et al. [13]. In the work of Mazhukin et al., the coupling with the sample is indirect in the sense the evaporation from the sample is not taken into account. In addition, the laser pulse is modeled as a plateau. In their model, only few excited states are considered for Al, all ions are assumed on their ground state and multicharged ions are neglected. These points prevent to develop a tool able to model very different plasmas and to test equilibrium every time along the plasma lifetime. Our model excludes these limitations and is described below.

### 3.1. Laser-sample interaction

In a first approximation, we assume that the laser energy flux density  $\varphi_E$  varies with time according to a Gaussian law. Its maximum value is therefore given by:

$$\varphi_{E,\max} = \frac{F}{\tau} \quad (1)$$

where  $F$  is the fluence and  $\tau$  is the pulse duration. For  $F=F_1$ , the maximal value  $\varphi_{E,\max}$  ( $\approx 10^{13}\text{ W m}^{-2}$ ) is moderate: the sample heats up, melts and then begins to evaporate. Vapor absorbs in its turn the laser beam and is excited and ionized. As a result, a complete modeling of the transition from the solid sample to the plasma requires to couple the phenomena in the gaseous phase with the heating of the solid surface. Amoruso [11] has shown that the surface temperature increases quickly at the beginning of the laser pulse. It reaches its maximum value before the end of the pulse, at a time which depends on the value of  $\varphi_{E,\max}$ . The subsequent decrease of the surface temperature results from the heat diffusion inside the sample and from the evaporation rate of the melt pool. Therefore, the global behavior of the surface temperature highly depends on the value of  $\varphi_{E,\max}$ . The model reported in the present paper does not resort to the resolution of the energy balance inside the sample: for the boundary condition at the sample surface, we assume that its temperature  $T_s$  evolves as  $\varphi_E$ . Consequently, the surface temperature increases from the melting point of aluminium ( $T_m=933\text{ K}$ ) up to a maximum  $T_{\max}$  which is reached when  $\varphi_E=\varphi_{E,\max}$ .

We have previously presented [22] a simple model which describes the sample heating during the earliest phase of the laser pulse: the surface reaches the melting point in less than 1 ns. So it is reasonable to consider that  $T_s > T_m$  during the whole of the laser pulse.

Initially, the sample is placed in vacuum and the evaporation is driven by the difference between the actual pressure and the saturated vapor pressure  $p_v$  of aluminum at the surface temperature. Unfortunately, the  $p_v(T)$  function is not known above the boiling point  $T_b=2800\text{ K}$ . The extrapolation of the accurate data given by Alcock et al. [23] for  $T < T_b$  leads to a critical temperature which belongs [24] to the range [5900 K, 7500 K] generally admitted for this thermodynamical parameter. So, we have used this extrapolated form  $p_v(T)$  for  $T < T_b$  in our calculations.

Owing to the rapid increase of the surface temperature  $T_s$ , the evaporation rate is difficult to estimate accurately. Mazhukin et al. [25] have discussed this point in detail. They have found that the pressure in the gaseous phase is relatively low (20% of the saturated vapor pressure). Thus the commonly used Hertz-Knudsen equation [26] can be used for calculating the atom number flux density emerging from the surface:

$$\varphi_A = \frac{p_v(T_s)}{\sqrt{2\pi m_A k_B T_s}} \quad [m^2 s^{-1}] \quad (2)$$

where  $m_A$  is the aluminum atomic mass and  $k_B$  the Boltzmann constant. The fraction of ions and electrons is assumed in equilibrium at  $T_s$ .

### 3.2. Species

The energy diagram of aluminum exhibits a first excited electronic state  $2P_{3/2}$  at 0.014 eV (equivalent to 160 K). The second excited state  $2S_{1/2}$  is characterized by an excitation energy of 3.143 eV (equivalent to 36500 K). During the laser pulse, the surface temperature is higher than  $T_m$ . Therefore, numerous atoms leaving the surface are already electronically excited in the  $2P_{3/2}$  state.

After atoms reach the gaseous phase, they are excited and ionized. The number of excited states considered in the present CR model has been reduced with respect to the actual states in order to avoid wasteful calculations. We have previously carried out such a simplification in the case of argon [27]. However, we have to keep in mind that aluminum is not a hydrogen like atom: contrary to argon, the core configuration plays an important role in the excitation energy. The reduction procedure adopted in the present case differs slightly from that adopted in the latter case: real levels of close energy are grouped into fictitious levels according to their core configuration. It results from this procedure that the number of fictitious levels considered in our CR model is 43 for Al, 42 for  $Al^+$  and 21 for  $Al^{2+}$ .  $Al^{3+}$  is only taken into account on its ground state. The resulting 107 levels are listed in Table 1 according to their core configuration and

**Table 1**

List of the 107 levels used in the present CR model. The energy  $E_{Z,i}$  is expressed in eV,  $g_{Z,i}$  is the statistical weight and  $l_{Z,i}$  is the angular momentum quantum number.  $C_{Z,i}$  corresponds to the core configuration: a for  $3s^2$ , b for  $3s3p3P$ , c for  $3s3p1P$ , d for  $3s$ , e for  $3p$ , f for  $2p^6$  and g for  $2p^5$ . The core configuration a, b and c refer to  $Al(Z=0)$ , d and e to  $Al^+(Z=1)$ , f to  $Al^{2+}(Z=2)$  and g to  $Al^{3+}(Z=3)$ .

Z	i	$E_{Z,i}$	$(C_{g,l})_{Z,i}$	Z	i	$E_{Z,i}$	$(C_{g,l})_{Z,i}$	Z	i	$E_{Z,i}$	$(C_{g,l})_{Z,i}$	
0	00.000	a,2,1		36	10.019	b,16,1		29	24.268	d,140,5		
1	00.014	a,4,1		37	10.062	b,14,1		30	24.359	d,83,4		
2	03.143	a,2,0		0	38	10.229	b,22,1	31	24.433	d,71,4		
3	04.022	a,10,2		39	10.339	b,20,1		1	32	24.491	d,71,4	
4	04.087	a,6,1		40	10.416	b,14,1		33	24.550	d,52,3		
5	04.673	a,2,0		41	10.481	b,24,1		34	24.617	d,63,3		
6	04.827	a,10,2		0	42	10.369	c,16,1	35	24.669	d,14,3		
7	04.994	a,6,1		0	05.986	d,1,0		36	16.584	e,5,1		
0	8	05.123	a,14,3	1	10.637	d,9,1		37	17.666	e,9,1		
9	05.234	a,12,2		2	13.407	d,3,1		1	38	19.827	e,1,1	
10	05.373	a,6,1		3	17.303	d,3,0		39	23.482	e,21,1		
11	05.449	a,44,4		4	17.808	d,1,0		40	24.075	e,9,0		
12	05.600	a,38,4		5	17.833	d,15,2		41	24.649	d,15,2		
13	05.624	a,12,2		6	19.061	d,9,1		0	24.815	f,2,0		
14	05.709	a,66,5		7	19.242	d,3,1		1	31.490	f,6,1		
15	05.796	a,52,3		8	19.635	d,5,2		2	39.192	f,10,2		
16	05.872	a,50,2		9	20.876	d,3,0		3	40.457	f,2,0		
17	05.927	a,74,2		10	21.047	d,16,2		4	42.630	f,6,1		
18	05.963	a,150,2		11	21.290	d,28,3		5	45.070	f,10,2		
19	03.608	b,12,1		12	21.458	d,5,2		6	45.596	f,14,3		
20	06.417	b,2,1		13	21.578	d,12,1		7	45.971	f,2,0		
21	07.029	b,6,1		14	22.379	d,3,0		8	46.941	f,6,1		
22	07.661	b,12,0		15	22.454	d,16,2		2	9	48.233	f,10,2	
23	08.388	b,10,2		16	22.538	d,28,3		10	48.360	f,32,4		
24	08.662	b,6,1		17	22.619	d,41,4		11	48.556	f,2,0		
25	08.731	b,8,1		18	22.723	d,12,1		12	49.071	f,6,1		
0	26	08.772	b,6,1	19	23.177	d,40,3		13	49.782	f,10,2		
27	08.852	b,30,2		20	23.283	d,48,4		14	49.860	f,54,5		
28	08.956	b,12,2		21	23.350	d,12,1		15	49.974	f,2,0		
29	09.055	b,16,2		22	23.633	d,19,2		16	50.279	f,6,1		
30	09.296	b,6,0		23	23.691	d,51,4		17	50.757	f,64,5		
31	09.489	b,10,2		24	23.746	d,30,3		18	50.836	f,2,0		
32	09.636	b,16,1		25	23.926	d,31,2		19	51.343	f,64,5		
33	09.733	b,24,2		26	23.966	d,113,5		20	51.750	f,54,5		
34	09.763	b,2,1		27	24.111	d,19,2		3	0	53.263	g,1,1	
35	09.941	b,10,2		28	24.141	d,125,5						

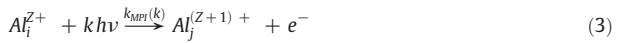
energy. In our conditions, the electron density is not high enough to induce atomic level shifts or ionization potential lowering [28].

The calculations assume that the energy of the free electrons follows a Maxwellian law at the temperature  $T_e$ .

### 3.3. Collisional and radiative elementary processes

The ion and atom levels listed in Table 1 are subject to spontaneous emission. Among the possible transitions, few are related to Einstein's coefficient higher than  $10^9 \text{ s}^{-1}$ . These transitions involve states whose energy difference is high and the gas can be expected as optically thick at the related wavelengths. For the other transitions, their radiative decay times are longer than the laser pulse duration. In addition, the number density during the gas → plasma transition leads to high collision frequencies. As a result, the spontaneous emission has been disregarded in the present study.

The species are also subject to multiphoton ionization (MPI):



where  $k$  is the number of photons needed to ionize aluminum on the excited electronic state  $i$  in the ionization state  $Z$  toward the excited state  $j$  in the ionization state  $Z+1$ . The cross section of the process (3) has not been neither experimentally nor theoretically determined. Therefore, we have assumed a hydrogen like behavior. For the related cross section, we adopt the form derived by Müsing et al. [29] from a hydrogen like behavior:

$$\sigma_{MPI}^{(k)} = \frac{\sigma_1^k}{(k-1)! v^{(k-1)} (h\nu)^k} \quad [m^{2k} \text{ W}^{-k} \text{ s}^{-1}] \quad (4)$$

where  $v$  is the photon frequency ( $5.64 \times 10^{14} \text{ s}^{-1}$  in our case). The cross section  $\sigma_1$  in numerator of Eq.(4) is related to photon excitation from a virtual excited state to the following: the typical value  $\sigma_1 = 10^{-20} \text{ m}^2$  has been chosen [30].

The reaction rate for the multiphoton ionization is given by:

$$k_{MPI}(k) = \sigma_{MPI}^{(k)} \Phi_E^k \quad [s^{-1}] \quad (5)$$

Inverse Bremsstrahlung (IB) phenomenon can heat electrons during the laser pulse due to the high energy flux density  $\varphi_E$ . Both atom and ion IB photoabsorptions have been taken into account in our calculations. The former usually plays a larger role than the latter in laser-induced plasmas [31]. This peculiarity results from the relatively high degree of ionization reached by the plasma. However, at early times after the laser pulse arrival ( $t_d < 1 \text{ ns}$ ), the vapor is weakly ionized and the electron-atom interaction can bring an important contribution to the heating of the electron gas. Like Amoruso [32], we have assumed that the electron-neutral IB cross section is proportional to the electron-ion one. He fixed the ratio of the cross sections to  $5 \times 10^{-3}$ , in high fluence (10 to 50 J cm<sup>-2</sup>). The mean values yielded by our CR model for the electron temperature and density are smaller than the Amoruso ones. They lead us to estimate this ratio as equal to  $7 \times 10^{-2}$ .

The absorption coefficients  $K_{IB}(Z)$  of radiation from electron through either ionic ( $Z \geq 1$ ) or neutral ( $Z=0$ ) inverse Bremsstrahlung are such that [33]:

$$K_{IB}(Z) = \left(1 - 0.93\delta_{Z,0}\right) \frac{4}{3} \sqrt{\frac{2\pi}{3m_e k_B T_e}} \frac{G}{hc\nu^3 m_e} \frac{e^6}{(4\pi\epsilon_0)^3} Z^{2(1-\delta_{Z,0})} \quad [m^5] \quad (6)$$

where  $G$  is the Gaunt factor, approximately equal to 1.2, and  $\delta$  is the classical Kronecker symbol.

These coefficients allow to calculate the amount of energy absorbed by free electrons through Inverse Bremsstrahlung by unit volume and unit time:

$$P_e(IB) = n_e \varphi_E \left( 1 - e^{-\frac{h\nu}{k_B T_e}} \right) \sum_{Z=0}^{Z=3} K_{IB}(Z) [Al^{Z+}] [W m^{-3}] \quad (7)$$

The term  $e^{-\frac{h\nu}{k_B T_e}}$  accounts for the influence of stimulated emission [34].

Considering the electron-induced processes, the analytical forms proposed by Drawin [35] are well adapted to the elaboration of CR models [27], even if the related cross sections refer to the case of hydrogen like atoms. Each level  $i$  listed in Table 1 is characterized by a value of the mean angular momentum quantum number  $l_i$  allowing the application of selection rules.

For an optically forbidden transition between a lower state  $i$  (energy  $E_{Z,i}$ ) and an upper state  $j$  (energy  $E_{Z,j}$ ) ( $\Delta l=0$ ), the cross section  $\sigma_{EE}^f(y)$  is given by:

$$\sigma_{EE}^f(y) = 4\pi a_0^2 \alpha_e \frac{y-1}{y^2} [m^2] \quad (8)$$

where  $y = \frac{\varepsilon}{E_{ji}}$  is the reduced electron kinetic energy  $\varepsilon$  with  $E_{ji} = E_{Z,j} - E_{Z,i}$  and  $a_0$  is the first Bohr radius. The parameter  $\alpha_e$  has been taken equal to 0.05 as for argon [36].

For ionization and for optically allowed transitions ( $\Delta l \neq 0$ ), the cross sections  $\sigma_{EI}(y)$  and  $\sigma_{EE}^a(y)$  are given by:

$$\sigma_{EI}(y) = \sigma_{EE}^a(y) = 4\pi a_0^2 \left( \frac{E_{ion}^H}{E_{ji}} \right)^2 \alpha_i \frac{y-1}{y^2} \ln \left( \frac{5}{4} \beta_i y \right) [m^2] \quad (9)$$

$E_{ion}^H$  is the ionization energy of atomic hydrogen,  $\alpha_i$  and  $\beta_i$  are two specific ionization factors whose values are derived from the case of argon ( $\alpha_i = 0.05$  and  $\beta_i = 4$ ).

The integration of these cross sections over the electron energy distribution function leads to thermal rate coefficients expressed as:

$$k_X = \bar{v}_e \int_a^{+\infty} e^{-y} \sigma_X(y) dy [m^3 s^{-1}] \quad (10)$$

$\bar{v}_e = \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi m_e}}$  is the thermal electron mean velocity and  $a$  is the non-dimensional term  $\frac{E_{ji}}{k_B T_e}$ . The mathematical forms Eqs.(8) and (9) lead to analytical rate coefficients (10) particularly convenient from the numerical point of view. With the exponential integral  $E_1(a)$  and the generalized exponential integral  $G_2(a)$  [37], the rate coefficient (10) gives indeed after some algebra:

$$k_{EE} = \bar{v}_e 4\pi a_0^2 \left[ \delta \alpha_e a^2 I_1(a) + (1-\delta) \alpha_i \left( \frac{E_{ion}^H}{k_B T_e} \right)^2 I_2(a) \right] [m^3 s^{-1}] \quad (11)$$

for either forbidden ( $\delta = 1$ ) or allowed ( $\delta = 0$ ) transitions and

$$k_{EI} = \bar{v}_e 4\pi a_0^2 \alpha_i \left( \frac{E_{ion}^H}{k_B T_e} \right)^2 I_2(a) [m^3 s^{-1}] \quad (12)$$

for ionization,  $\delta = \delta_{l(i)l(j)}$  is a specific Kronecker delta and the functions  $I_1(a)$  and  $I_2(a)$  are defined by:

$$I_1(a) = \frac{e^{-a}}{a} - E_1(a) \quad (13)$$

$$I_2(a) = I_1(a) \ln \left( \frac{5}{4} \beta_i \right) + \frac{E_1(a)}{a} - G_2(a) \quad (14)$$

Generally speaking, elastic collisions, which are largely more frequent than inelastic ones, tend to ensure a Maxwellian energy distribution function for heavy species. However, the important mass difference between electron and atom reduces the efficiency of the elastic collisions in terms of kinetic energy transfer. As a result, thermal non-equilibrium  $T_e \neq T_A$  can be expected. This non-equilibrium situation ( $T_e > T_A$ ) is reinforced by the energy gain of electrons due to MPI and IB processes discussed above. In an aluminum laser-induced plasma, the elastic electron-heavy species is given by [38]:

$$v_{elas} = \overline{\sigma}_{Al} \bar{v}_e [Al] + \frac{4\pi}{3\sqrt{3}} \left( \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \frac{1}{m_e^{1/2} (k_B T_e)^{3/2}} \ln \Lambda \sum_{Z=1}^{Z=3} Z^2 [Al^{Z+}] [s^{-1}] \quad (15)$$

with usual notations ( $[Al^{Z+}] = \sum_i [Al_i^{Z+}] \forall Z \in [0,3]$ ) and assuming that the influence of multicharged ions on the Coulomb logarithm  $\ln \Lambda$  is negligible. In Eq.(15),  $\overline{\sigma}_{Al}$  is the mean electron-atom elastic cross section which results from integration over the electron energy distribution function at  $T_e$ . The theoretical results given by Ryabikh and Fabrikant [39] and Jablonski et al. [40] allow to estimate this mean cross section: over the range  $1000 K < T_e < 25000 K$ , we obtained  $\overline{\sigma}_{Al} \approx 7 \times 10^{-19} m^2$ .

Table 2 summarizes previous information. The backward processes are also accounted for: each related rate coefficient is derived from the detailed balance principle. Writing any process under the general form  $Al_i^{Z_1+} \xrightarrow{k_{\text{MPI}}} Al_j^{Z_2+}$ , the backward rate coefficient is calculated by:

$$k^{(b)} = \frac{k}{\frac{2^{1-\delta} g_j}{g_i} \left( \frac{2\pi m_e k_B T_e}{h^2} \right)^{\frac{3(1-\delta)}{2}} e^{-\frac{E_j - E_i}{k_B T_e}}} \quad (16)$$

with  $\delta = \delta_{Z_1 Z_2}$ .

### 3.4. Balance equations

The elementary processes listed above are included in the source term  $P_{e,A}$  of the energy balance equation:

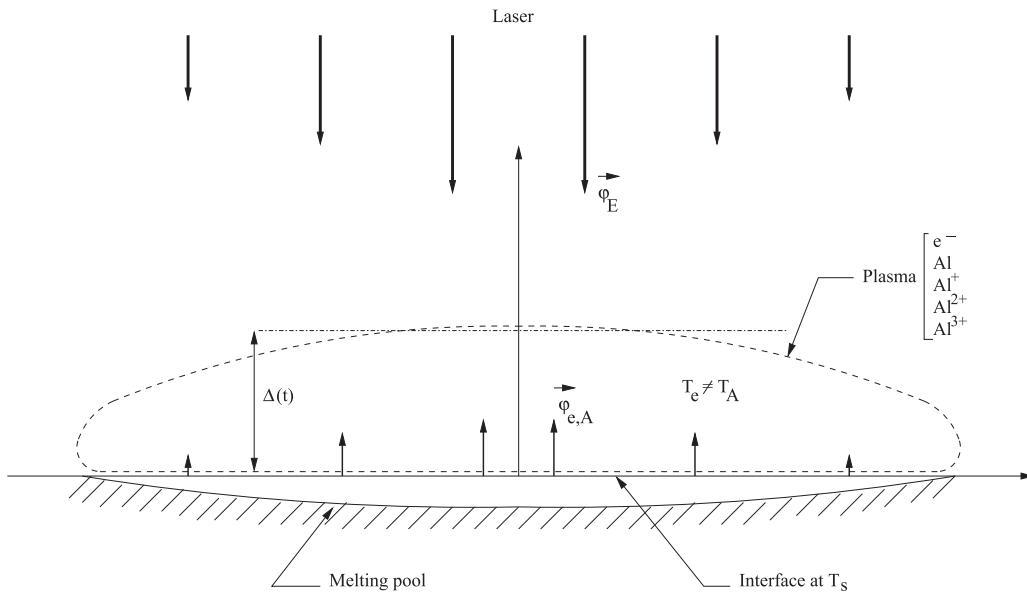
$$\frac{\partial u_{e,A}}{\partial t} = P_{e,A} - \text{div}(\vec{\varphi}_{e,A}) [W m^{-3}] \quad (17)$$

which is applied either to electrons (subscript  $e$ ) or to heavy (atoms and ions) particles (subscript  $A$ ).  $u$  represents the energy per unit

**Table 2**

List of the forward elementary processes undergone by heavy particles accounted for in our study.

Elementary process	Rate coefficient	References
<i>Multiphoton ionization</i> $Al_i^{Z+} + khv \xrightarrow{k_{\text{MPI}}(k)}$ $Al_j^{(Z+1)+} + e^-$	$k_{\text{MPI}}(k) = \frac{\Omega_i^k}{(k-1)! \nu^{(k-1)} (h\nu)^k} \varphi_E^k$	[29,30]
<i>Electron induced processes</i>		
(1) Excitation $e^- + Al_i^{Z+} \xrightarrow{k_{\text{ex}}} Al_j^{Z+} + e^-$	$k_{\text{EE}} = \bar{v}_e 4\pi a_0^2 \times$ $\left[ \delta \alpha_e a^2 I_1(a) + (1-\delta) \alpha_i \left( \frac{E_{ion}^H}{k_B T_e} \right)^2 I_2(a) \right]$	[35–37]
	$\bar{v}_e = \sqrt{\frac{8k_B T_e}{\pi m_e}}, a = \frac{E_{Z,j} - E_{Z,i}}{k_B T_e}$	
	$I_1(a) = \frac{e^{-a}}{a} - E_1(a)$	(cf. our paper)
	$I_2(a) = I_1(a) \ln \left( \frac{5}{4} \beta_i \right) + \frac{E_1(a)}{a} - G_2(a)$	(cf. our paper)
	–optically allowed transition ( $l_j \neq l_i$ ): $\delta = 0$	
	–optically forbidden transition ( $l_j = l_i$ ): $\delta \neq 0$	
(2) Ionization $e^- + Al_i^{Z+} \xrightarrow{k_{\text{MPI}}}$ $e^- + Al_j^{(Z+1)+} + e^-$	$k_{EI} = \bar{v}_e 4\pi a_0^2 \alpha_i \left( \frac{E_{ion}^H}{k_B T_e} \right)^2 I_2(a)$ $a = \frac{E_{Z,j} - E_{Z,i}}{k_B T_e}$	[35–37]



**Fig. 1.** Physical situation studied in the present work. The plasma with the thickness  $\Delta(t)$  is assumed uniform and produced by the concomitant vaporization of the melting pool and the laser light absorption.

volume of the related particles and  $\vec{\varphi}$  the energy flux density vector. We have assumed that the plasma is formed according to a uniform layer whose boundaries are the sample surface and a hypothetic wall moving from the surface and separating the layer from the external vacuum (cf. Fig. 1). In this context, the divergence term of Eq.(17) takes the simple form:

$$\text{div}(\vec{\varphi}_{e,A}) = -\frac{\varphi_{e,A}}{\Delta(t)} \quad (18)$$

where  $\Delta(t)$  is the instantaneous thickness of the plasma layer.

Since the plasma is not in equilibrium from the excitation point of view, the specific heats are not defined. The concept of sound velocity is therefore inappropriate in this context: as a result, we cannot assume that the plasma velocity is equal to that of sound. The plasma is characterized by a homogeneous temperature: the plasma pressure is therefore uniform as well. As a result, the plasma in expansion cannot be driven by a gradient pressure. The plasma layer thickness increase is only due to kinetic energy from the layer particles whose mean value is  $3/2k_B T_A$ . The characteristic length  $\Delta(t)$  evolving owing to the ions and atoms motion, we have therefore assumed that the plasma expands owing to this motion driven by the mean thermal velocity such that:

$$\frac{d\Delta(t)}{dt} = \bar{v}_A = \sqrt{\frac{8k_B T_A}{\pi m_A}} \quad (19)$$

The source term  $P_{e,A}$  of Eq.(17) accounts for the elementary processes described in the previous sections: its mathematical form is given in Table 3.

The volumic energy  $u_{e,A}$  is calculated with:

$$u_{e,A} = \begin{cases} \frac{3}{2}n_e k_B T_e & \text{for electrons} \\ \sum_{Z,i} \left( \frac{3}{2}k_B T_A + E_{Z,i} \right) [Al_i^{Z+}] & \text{for heavy particles} \end{cases} \quad (20)$$

Replacing the related terms in Eq.(17), one obtains finally:

$$\begin{cases} \frac{dT_e}{dt} = \frac{2}{3k_B n_e} \left( P_e + \frac{\varphi_e(t)}{\Delta(t)} \right) - \frac{T_e}{n_e} \frac{dn_e}{dt} \\ \frac{dT_A}{dt} = \frac{2}{3k_B \sum_{Z,i} [Al_i^{Z+}]} \left[ P_A + \frac{\varphi_A(t)}{\Delta(t)} - \sum_{Z,i} \left( \frac{3}{2}k_B T_A + E_{Z,i} \right) \frac{d[Al_i^{Z+}]}{dt} \right] \end{cases} \quad (21)$$

The general balance equation (see [16]) is applied to each type of excited atom or ion  $Al_i^{Z+}$  listed in Table 1 in coupling with Eqs.(19) and (22). All these equations form a non-linear system of 111 ordinary differential equations which are solved by using DVODE library [41]: the time evolution of  $[Al_i^{Z+}]$ ,  $\Delta$ ,  $T_e$  and  $T_A$  are finally determined.

#### 4. Results and discussion

The present model deals with two values for the maximum interface temperature  $T_{max}$ : 2900 K and 3900 K. They are chosen below the aluminum critical temperature owing to the weak value of the laser fluence ( $F < 7 \text{ J cm}^{-2}$ ).

##### 4.1. Temperatures

Fig. 2 displays the evolution of the electron ( $T_e$ ), atom ( $T_A$ ) and sample ( $T_s$ ) temperatures. We observe two consecutive phases: the first one which corresponds to the plasma formation ends when the laser flux density reaches its maximum (delay time  $t_d = 5 \times 10^{-9} \text{ s}$ ). In both cases for  $T_{max}$ , the electron temperature increases strongly up to approximately 8000 K. The heavy particles temperature  $T_A$  finally reaches 4900 K for  $T_{max} = 3900 \text{ K}$  and 3600 K for  $T_{max} = 2900 \text{ K}$ .

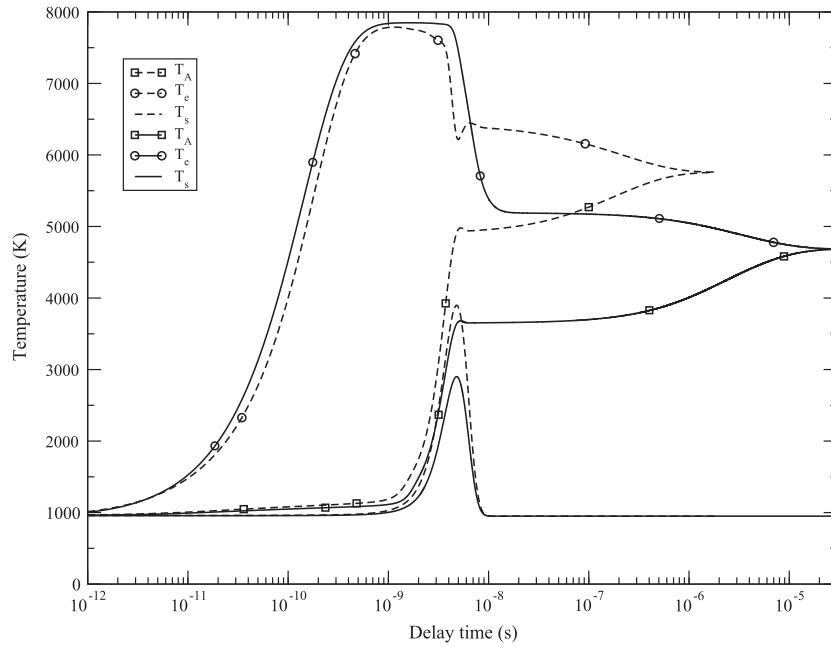
Then, the plasma passes to a second phase which is characterized by a slow evolution for  $T_A$  and a steep decrease for  $T_e$ . The thermal equilibrium is reached at  $t_d = \tau_\infty \approx 1 \mu\text{s}$  for  $T_{max} = 3900 \text{ K}$  and  $t_d = \tau_\infty \approx 20 \mu\text{s}$  for  $T_{max} = 2900 \text{ K}$ . The corresponding temperatures

**Table 3**Mathematical form for the source term  $P_{e,A}$  in Eq. 17.

Source term	Mathematical form	Related process/backward rate coefficient
$P_e$	$\sum_{Z,i,j} \left\{ k_{MPI}(k) [Al_i^Z +] - k_{MPI}^{(b)}(k) [Al_j^{(Z+1)+}] n_e \right\} (kh\nu - E_{Z+1,j})$ $+ n_e \varphi_E \left( 1 - e^{-\frac{h\nu}{k_B T_e}} \right) \sum_{Z=0}^{Z=3} K_{IB}(Z) [Al^Z +]$ $+ \sum_{Z,i,j} \left\{ -k_{EI}[Al_i^Z +] + k_{EI}^{(b)}[Al_j^{(Z+1)+}] n_e \right\} n_e (E_{Z+1,j} - E_{Z,i})$ $- n_e \frac{m_e}{m_A} v_{el} \frac{3}{2} k_B (T_e - T_A)$	Multiphoton ionization / $k_{MPI}^{(b)}(k)$ Inverse Bremsstrahlung / – Electron ionization / $k_{EI}^{(b)}$ Electron excitation / $k_{EE}^{(b)}$ Elastic collisions / –
$P_A$	$\sum_{Z,i,j} \left\{ k_{MPI}(k) [Al_i^Z +] - k_{MPI}^{(b)}(k) [Al_j^{(Z+1)+}] n_e \right\} (E_{Z+1,j} - E_{Z,i})$ $+ \sum_{Z,i,j} \left\{ k_{EI}[Al_i^Z +] - k_{EI}^{(b)}[Al_j^{(Z+1)+}] n_e \right\} n_e (E_{Z+1,j} - E_{Z,i})$ $+ \sum_{Z,i,j} \left\{ k_{EE}[Al_i^Z +] - k_{EE}^{(b)}[Al_j^{(Z+1)+}] n_e \right\} n_e (E_{Z,j} - E_{Z,i})$ $+ n_e \frac{m_e}{m_A} v_{el} \frac{3}{2} k_B (T_e - T_A)$	Multiphoton ionization / $k_{MPI}^{(b)}(k)$ Electron ionization / $k_{EI}^{(b)}$ Electron excitation / $k_{EE}^{(b)}$ Elastic collisions / –

are  $T_\infty = 5800$  K and 4700 K respectively. The apparent conservation of the temperature difference is purely fortuitous: the high degree of non-linearity of the equations prevents any conservation of this type. The final thermal equilibrium results from the elastic collisions. When  $T_{max} = 2900$  K,  $T_\infty$  is closer to the electron temperature reached at the

end of the first phase than when  $T_{max} = 3900$  K. That is due to pressure effect: the heavy species density being higher for high values of  $T_{max}$ , they play the role of a reservoir where electrons lose further their energy. One can point the influence of the increase of the collision frequency with  $T_{max}$  by considering the time  $\tau_\infty$  at which equilibrium



**Fig. 2.** Evolution in time of the heavy species kinetic temperature  $T_A$ , electron temperature  $T_e$  and interface temperature  $T_s$ . In dashed lines are displayed the results for  $T_{max} = 3900$  K and in continuous lines those related to the case  $T_{max} = 2900$  K.

is fulfilled:  $\tau_\infty(T_{max}=3900\text{ K}) \ll \tau_\infty(T_{max}=2900\text{ K})$ . This comparison illustrates once again the non-linearity of the problem.

In order to detail the breakdown mechanism (in other words the plasma creation), we have rewritten Eq.(21) involving the source term displayed in Table 3 to clearly separate the different contributions to the  $T_e$  and  $T_A$  evolutions. We have:

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dT_e}{dt} = \underbrace{\frac{2}{3k_B n_e} P_e(\text{MPI})}_{\Theta_e(\text{MPI})} + \underbrace{\frac{2}{3k_B n_e} P_e(\text{IB})}_{\Theta_e(\text{IB})} \\ + \underbrace{\frac{2}{3k_B n_e} P_e(\text{EI})}_{\Theta_e(\text{EI})} + \underbrace{\frac{2}{3k_B n_e} P_e(\text{EE})}_{\Theta_e(\text{EE})} \\ + \underbrace{\frac{2}{3k_B n_e} P_e(\text{EC})}_{\Theta_e(\text{EC})} \\ + \underbrace{\frac{2}{3k_B n_e} \frac{\varphi_e(t)}{\Delta(t)}}_{\Theta_e(\varphi)} \\ - \underbrace{\frac{T_e dn_e}{n_e dt}}_{\Theta_e(u_1)} \\ \frac{dT_A}{dt} = \underbrace{\frac{2}{3k_B \sum_{Z,i} [A_i^{Z,+}]} P_A(\text{MPI})}_{\Theta_A(\text{MPI})} \\ + \underbrace{\frac{2}{3k_B \sum_{Z,i} [A_i^{Z,+}]} P_A(\text{EI})}_{\Theta_A(\text{EI})} + \underbrace{\frac{2}{3k_B \sum_{Z,i} [A_i^{Z,+}]} P_A(\text{EE})}_{\Theta_A(\text{EE})} \\ + \underbrace{\frac{2}{3k_B \sum_{Z,i} [A_i^{Z,+}]} P_A(\text{EC})}_{\Theta_A(\text{EC})} \\ + \underbrace{\frac{2}{3k_B \sum_{Z,i} [A_i^{Z,+}]} \frac{\varphi_A(t)}{\Delta(t)}}_{\Theta_A(\varphi)} \\ - \underbrace{\frac{T_A}{\sum_{Z,i} [A_i^{Z,+}]} \sum_{Z,i} \frac{d[A_i^{Z,+}]}{dt}}_{\Theta_A(u_1)} - \underbrace{\frac{2}{3k_B \sum_{Z,i} [A_i^{Z,+}]} \sum_{Z,i} E_{Z,i} \frac{d[A_i^{Z,+}]}{dt}}_{\Theta_A(u_2)} \end{array} \right. \quad (22)$$

where  $u_1$  refers to the translation energy storage resulting from the density variations (influence of the elastic collisions between same type of particles) and  $u_2$  refers to excitation and ionization energy storage resulting from the excited population densities variations (influence of inelastic collisions between heavies).

Fig. 3 displays the temporal evolution of the contributions to Eq. (22) when the maximum temperature of the sample surface is fixed at  $T_{max}=2900\text{ K}$ . Concerning the electron temperature, the transport contribution from the interface becomes rapidly negligible while the major contribution is the MPI one. The competition between this contribution and that due to the translation energy storage resulting from the increase of  $n_e$  leads to the increase of  $T_e$ . When the laser energy flux density becomes sufficiently high, the MPI influence decreases whereas the IB one increases. This behavior is concomitant with the increase of the influence of the electron-induced ionization phenomena owing to the high values of the electron density at this moment. All radiative phenomena rapidly collapse at the end of the laser pulse and the main phenomenon leading to thermal equilibrium is the elastic collisions which is already displayed by Fig. 2.

It is interesting to note that MPI processes are stronger than IB ones during the first phase. This behavior is also encountered for higher values for  $T_{max}$ . Indeed, Fig. 2 shows that changing  $T_{max}$  from 2900 K to 3900 K leads to a similar value for the maximum electron temperature. Conversely to assertions stated in the literature, the IB process is not necessarily the main one leading to the plasma creation. In the present case, the MPI processes are largely dominant.

A similar analysis can be performed about  $T_A$ . During the first phase, the dominant process is the transport from the interface which is very well counterbalanced by the atom density increase: the relatively good balancing leads to a very weak increase of  $T_A$ . The MPI processes play a significant role when the laser flux density reaches its maximum value and they become negligible subsequently. After  $t_d \approx 2 \times 10^{-8}\text{ s}$ , the thermal relaxation is largely driven by elastic collisions whereas the inelastic collisions tendency to ionize the gas is totally counterbalanced by  $\Theta_A(u_2)$ . This is logical since  $T_A$  does not change when a heavy particle is subject to ionization: its translation energy remains unchanged.

#### 4.2. Population densities

Time behavior of heavy species number densities is displayed in Fig. 4. The two phases put forward in Section 4.1 are observed as well: the populations rapidly increase up to  $5 \times 10^{-9}\text{ s}$  approximately, then they slowly relax. The influence of the energy flux densities  $\varphi_{e,A}$  on the results is noticeable: for short time scales,  $[Al_0]$  and  $n_e$  are equal to some  $10^{13}\text{ m}^{-3}$  and  $10^4\text{ m}^{-3}$  respectively, while the other population densities remain largely smaller.

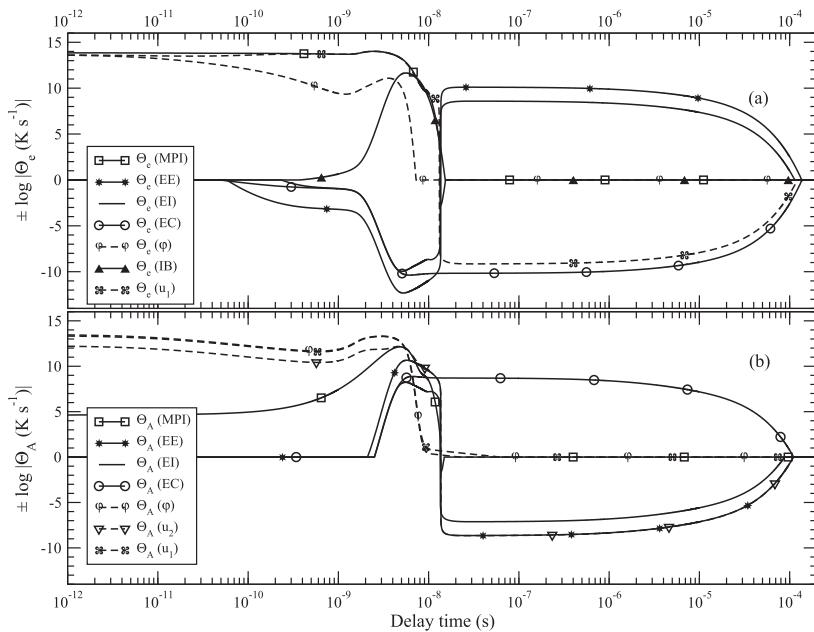
The maximum densities are obtained at  $t_d \approx 5 \times 10^{-9}\text{ s}$ . The ratio  $\rho$  between  $n_e$  and  $[Al_0]$  provides a good estimate of the ionization degree. For  $T_{max}=2900\text{ K}$  and  $3900\text{ K}$ ,  $\rho$  is in the order of some percents. The calculation performed for  $T_{max}=6700\text{ K}$ , which is the aluminum critical temperature leads to a largely higher value ( $\approx 50\%$ ). As a result,  $\rho$  does not depend linearly on  $T_{max}$ .

The subsequent time evolution of population densities is very slow. It is interesting to note that the concentrations can be divided easily by a factor of 10 for  $10^{-7}\text{ s} < t_d < 10^{-6}\text{ s}$ .

Few experimental results have been obtained in similar conditions. In laser-induced experiment (30 ns, 248 nm,  $5\text{ J cm}^{-2}$ ) performed on titanium in vacuum, Capitelli et al. [42] have measured  $n_e \approx 2 \times 10^{24}\text{ m}^{-3}$  at  $t_d \approx 2 \times 10^{-8}\text{ s}$  and  $n_e \approx 2 \times 10^{23}\text{ m}^{-3}$  at  $t_d \approx 3 \times 10^{-7}\text{ s}$ . Blairs and Abassi [43] have recently reviewed the critical temperature  $T_c$  of different metals and the titanium one can be estimated as equal to 9950 K. In the experimental conditions adopted by Capitelli et al., the laser energy flux density does not exceed  $\varphi_{e,max} \approx 10^{11}\text{ W m}^{-2}$  leading to a moderate value for  $T_{max}$  in comparison with  $T_c$ . In addition, the titanium ionization energy (6.8 eV) is close to the aluminum one. As a result, experiments performed on aluminum and titanium can be compared, keeping in mind that the laser wavelength is different from one case to the other. Seeing that the maximum electron density obtained for  $T_{max}=3900\text{ K}$  belongs to the interval  $[10^{23}\text{ m}^{-3}, 10^{24}\text{ m}^{-3}]$  and decreases by one order of magnitude for  $10^{-7}\text{ s} < t_d < 10^{-6}\text{ s}$ , it is reasonable to say that electrons behave in the same manner in both cases.

We have previously mentioned the very interesting work of Diwakar and Hahn [5] devoted in part to the time behavior of electron density evolution in a laser-induced plasma. Unfortunately, their Thomson scattering diagnostic has been applied to breaking air molecules at atmospheric pressure. The conditions are so far from ours than no relevant comparison can be made.

Another important experimental work has been performed by Galmed and Harith [44] on aluminum sample. The conditions are very different from ours inasmuch as the laser wavelength is  $\lambda=1064\text{ nm}$ , the fluence higher than  $10^3\text{ J cm}^{-2}$  and the sample is set under atmospheric pressure. A comparison to our results should be irrelevant but it is interesting to note that they obtain  $n_e \approx 5 \times 10^{24}\text{ m}^{-3}$  at the end of the laser pulse ( $\tau=6\text{ ns}$  in duration). This value decreases by almost one order of magnitude during the subsequent  $3\text{ }\mu\text{s}$ . It is well known that laser-induced plasmas produced under ambient pressure are denser than in vacuum [45]: so, we can expect lower density in the case of experiments performed under low pressure as predicted by our calculations.

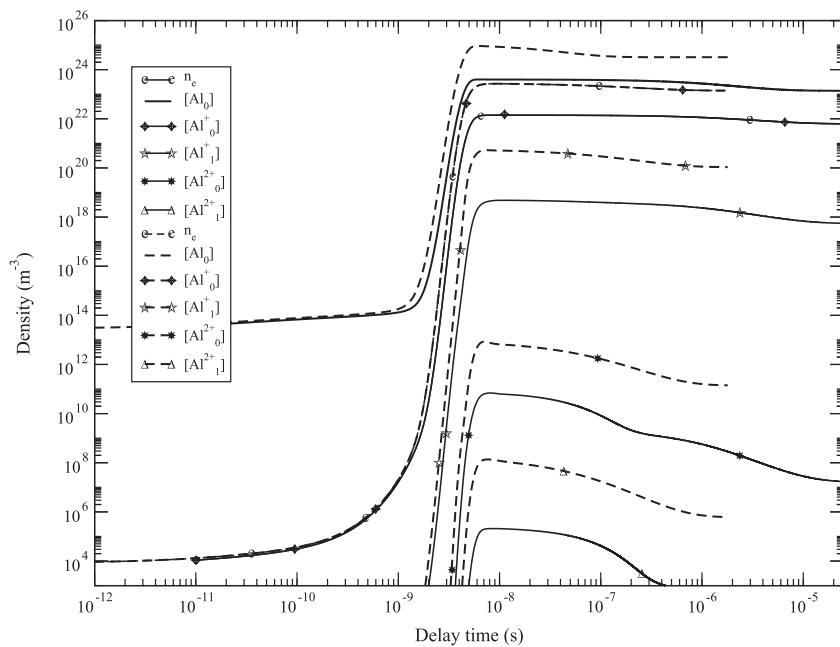


**Fig. 3.** Evolution in time of the  $\Theta_e$  contributions to  $d T_e/d t$  (a) and of the  $\Theta_A$  contributions to  $d T_A/d t$  (b) with  $T_{\max} = 2900$  K. The values displayed are positive if  $\Theta_{e,A}$  is positive and negative if not.

Fig. 5 displays the evolution in time of the different contributions to the Al and  $\text{Al}^+$  ground state number densities (respectively noted  $\Xi_{\text{Al}}$  and  $\Xi_{\text{Al}^+}$ ). Concerning the atoms, one notices the major and concomitant roles played by vaporization and ionization during the increase of the laser flux density. Vaporization is quickly overtaken by electron-induced excitation on and after the end of the laser pulse. Electron-ion three body recombination brings a minor contribution to the atomic populations. The behavior of the  $\text{Al}^+$  ground state population is largely dominated by MPI phenomena: the gas  $\rightarrow$  plasma

transition can be therefore understood by invoking this kind of process. We have noted in Section 4.1 the reduced contribution of the IB process to the increase of  $T_e$ . Even if the level reached by  $T_e$  is high in our case, the ionization of the gas does not result from the latter increase but rather from laser light absorption directly producing ions.

In order to estimate the time scales needed to reach equilibrium excitation, we present on Fig. 6 Boltzmann plots for aluminum atoms at four delay times fixed at 1, 5, 10 and 100 ns. The atomic core configurations are clearly separated to put forward possible different



**Fig. 4.** Same as Fig. 2, but for the excited states population density of Al,  $\text{Al}^+$  and  $\text{Al}^{2+}$ . The  $\text{Al}^{3+}$  population density is largely weaker than  $10^4 \text{ m}^{-3}$ .

behaviors. We note that after a steep increasing phase, populations seem to rapidly reach a steady excitation equilibrium characterized by straight lines in Boltzmann plots. However, we have to comment cautiously these results owing to the large ranges over which they are shown: a seemingly linear form does not mean that equilibrium is necessarily reached. This point will be discussed in the following. It is worth to notice that the excitation state does not depend on the core configuration: even if the excitation energy of the atom is higher than the first ionization limit, the number density of the excited states seems to follow the excitation equilibrium. The  $\text{Al}^+$  excited number densities behave in a similar way, as shown in Fig. 7 but, contrary to the latter case, the decrease of the highly excited population densities begins earlier. The correlation between these levels seems rather high. Finally, Fig. 8 shows the  $\text{Al}^{2+}$  Boltzmann plots: it is obviously more difficult to obtain straight lines, so that an excitation equilibrium is not fulfilled. However, it is interesting to note that the decrease of the  $\text{Al}^{2+}$  population densities starts earlier than for the corresponding  $\text{Al}^+$  states, precisely when the laser flux density is maximum ( $t_d \approx 5 \times 10^{-9}$  s). This simultaneity proves clearly that the  $\text{Al}^{2+}$  production is mainly driven by MPI processes: indeed, the electrons production cannot be ascribed to the increase of  $T_e$ .

Since Boltzmann plots lead to linear form for Al and  $\text{Al}^+$ , even at short time scales, the concept of excitation temperature can be used to illustrate the behavior of the plasma. For aluminum atoms and ions in  $C_Z$  configuration, this temperature is defined as:

$$T_{\text{exc}}(\text{Al}_{C_Z}) = - \frac{1}{k_B} \left[ \frac{d \ln \left( [\text{Al}]_{i,C_Z}^{Z+} / g_{i,C_Z} \right)}{d E_i} \right]_{lsl, i_{\min} < i < i_{\max}} \quad (23)$$

where  $lsl$  means that the derivative is the slope of the least squares line. The range  $i_{\min} < i < i_{\max}$  is chosen with relevance. We display in Fig. 9 the excitation temperature of three core configurations (a), (b) and (d) corresponding to Al and  $\text{Al}^+$  only, the  $\text{Al}^{2+}$  Boltzmann plot being inadequately linear as mentioned previously. More precisely,

$T_{\text{exc}}(\text{Al}_0)$  corresponds to levels whose energy belongs to the energy interval [4.022 eV, 5.963 eV] (16 different levels of Al),  $T_{\text{exc}}(\text{Al}_b)$  to the range [8.662 eV, 10.481 eV] (18 levels of Al) and  $T_{\text{exc}}(\text{Al}_d)$  to [22.379 eV, 24.669 eV] (22 levels of  $\text{Al}^+$ ). For easier comparisons, the evolution of  $T_e$ ,  $T_A$  and  $T_s$  are also displayed. At the early delay times ( $t_d < 0.1$  ns), one observes fluctuations around 1000 K which have physically no sense. They result from the very low values obtained for the number densities. Then the excitation growths and remains characterized by a temperature comprised between the surface temperature  $T_s$  and the electron one  $T_e$ . This is not surprising since the electron-induced collisions do not have enough time to impose the equilibrium while the laser flux density and consequently light absorption begin to be efficient. The very fast increase of electron density induces a rapid coupling between the different excitation temperatures, even during the laser pulse where electron density almost reaches  $10^{22} \text{ m}^{-3}$ . After the laser pulse, the different temperatures remain well coupled except that related to the core configuration (d). Its peculiar behavior results from the three body recombination of the  $\text{Al}^{2+}$  ions leading to the formation of  $\text{Al}^+$  ions on very excited states whose depopulation toward lower states is therefore limited. This is the last trace of the excitation of the plasma due to the laser light absorption. At a delay time of  $t_d \approx 10^{-7}$  s, the atoms reach a complete excitation equilibrium with electrons whatever the core configuration considered.

## 5. Conclusion

This work addresses a 0D numerical model dedicated to the breakdown resulting from the interaction at moderate energy flux density between a laser pulse and an aluminum sample set in vacuum. We have adopted a simplified approach which imposes the evolution in time of the interface temperature independently of the incident flux density. This model assumes fulfilled equilibrium only for translation degrees of freedom with Maxwellian velocity distributions for electrons and atoms at different temperatures

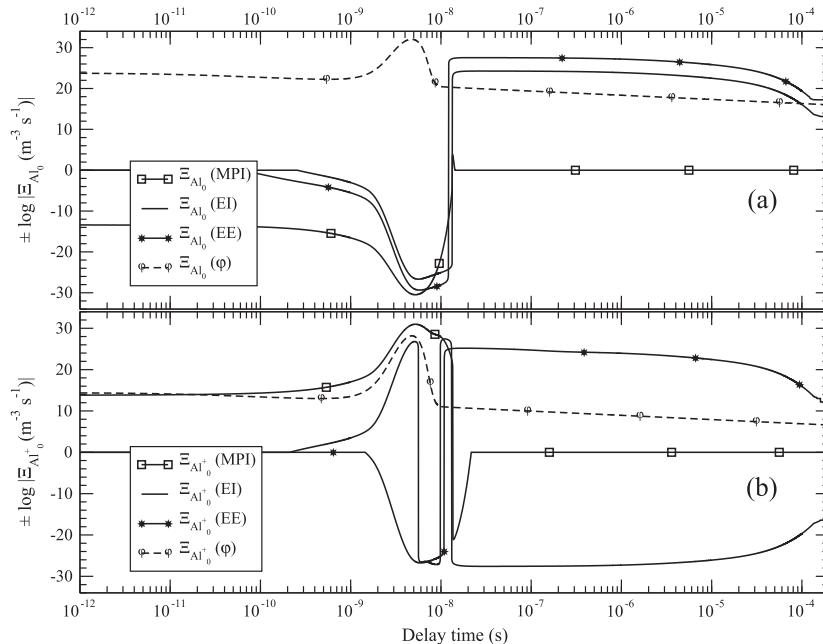
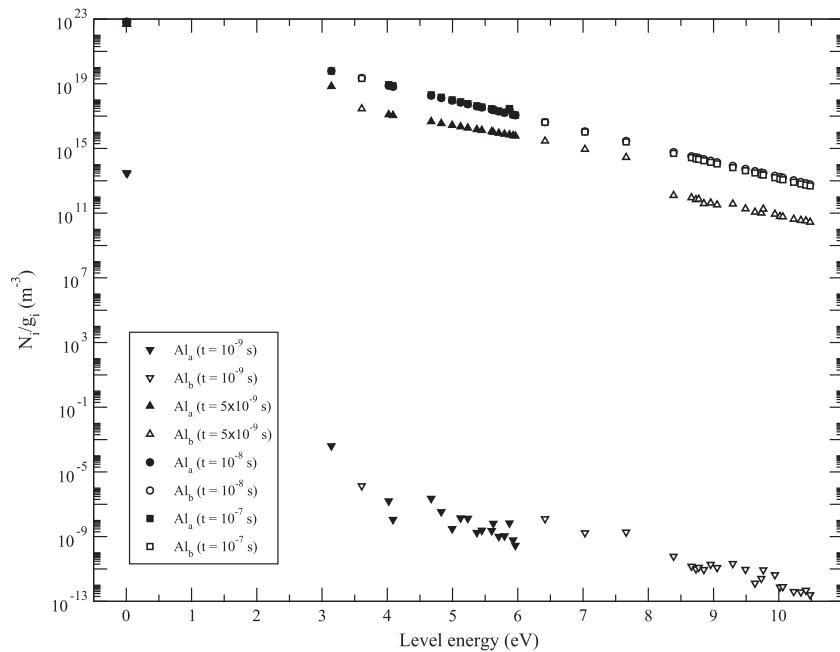


Fig. 5. Time evolution of the  $\Xi$  contributions to the population density of Al (a) and  $\text{Al}^+$  (b) ground state ( $T_{\max} = 2900$  K). The values displayed are positive if  $\Xi_{\text{Al}, \text{Al}^+}$  is positive and negative if not.



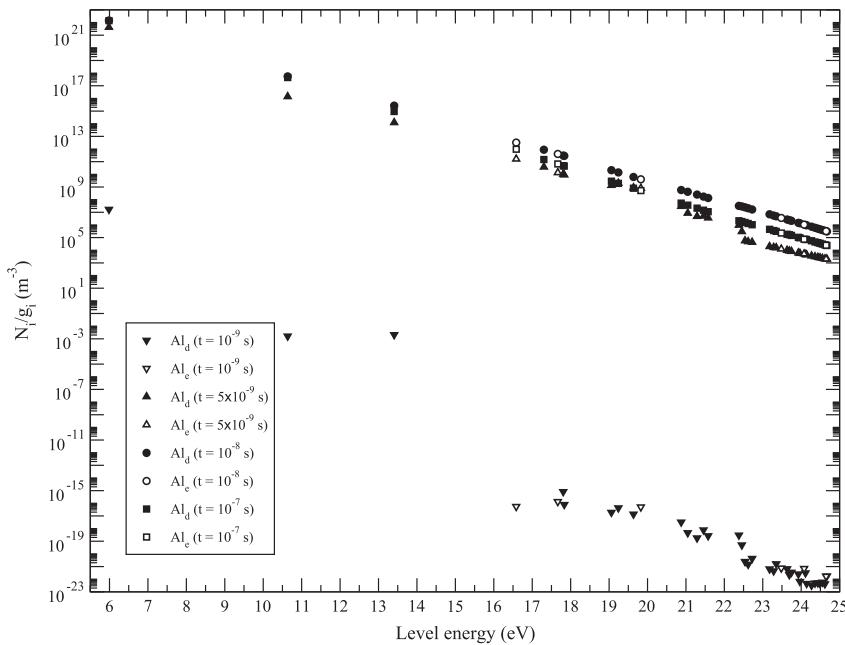
**Fig. 6.** Al Boltzmann plots for  $t_d = 1, 5, 10$  and  $100$  ns according to the core configuration (see Table 1) with  $T_{max} = 2900$  K. The ionization limit of the configuration (a) is 5.986 eV.

( $T_e \neq T_A$ ).  $\text{Al}^+$ ,  $\text{Al}^{2+}$  and  $\text{Al}^{3+}$  on their different excited states are considered in addition to Al.

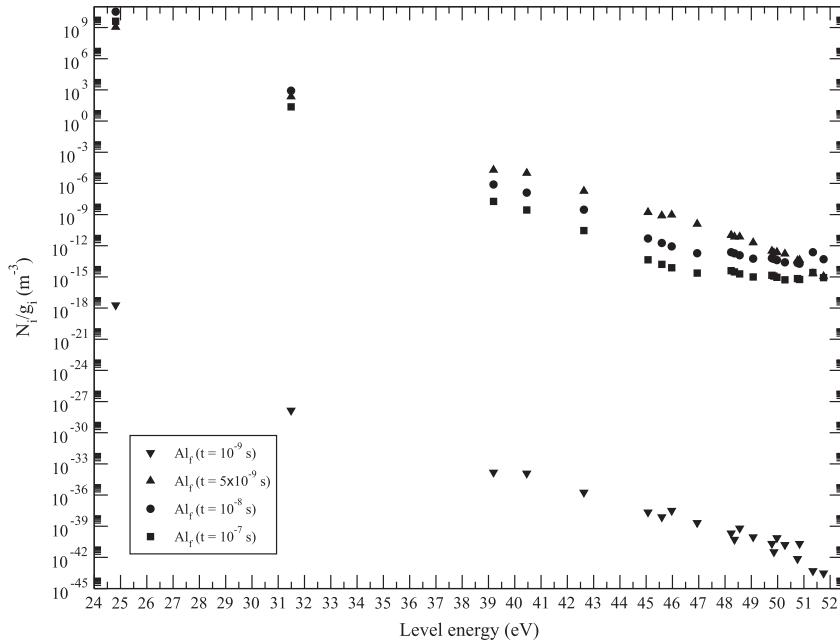
The model, which integrates a large spectrum of collision and radiative elementary processes (electron-induced excitation and ionization, multiphoton ionization and inverse Bremsstrahlung, elastic collisions), takes into account the transport phenomenon resulting from the rapid surface ablation.

The results put forward the very rapid ionization of the aluminum gas. Multiphoton ionization plays a very important role from this

point of view, largely higher than the inverse Bremsstrahlung phenomenon yet often cited as a preponderant mechanism. Even if the electron density is high enough to induce strong absorption, the results of the model show that the electron temperature increase remains moderate and mainly due to the multiphoton ionization processes. In these conditions, the latter phenomenon causes the initial increase of both electron temperature and density. The gas to plasma transition being achieved, the relaxation of the plasma takes place until equilibrium mainly through electron-induced processes.



**Fig. 7.**  $\text{Al}^+$  Boltzmann plots for  $t_d = 1, 5, 10$  and  $100$  ns according to the core configuration (see Table 1) with  $T_{max} = 2900$  K. The ionization limit of the configuration (d) is 24.815 eV.



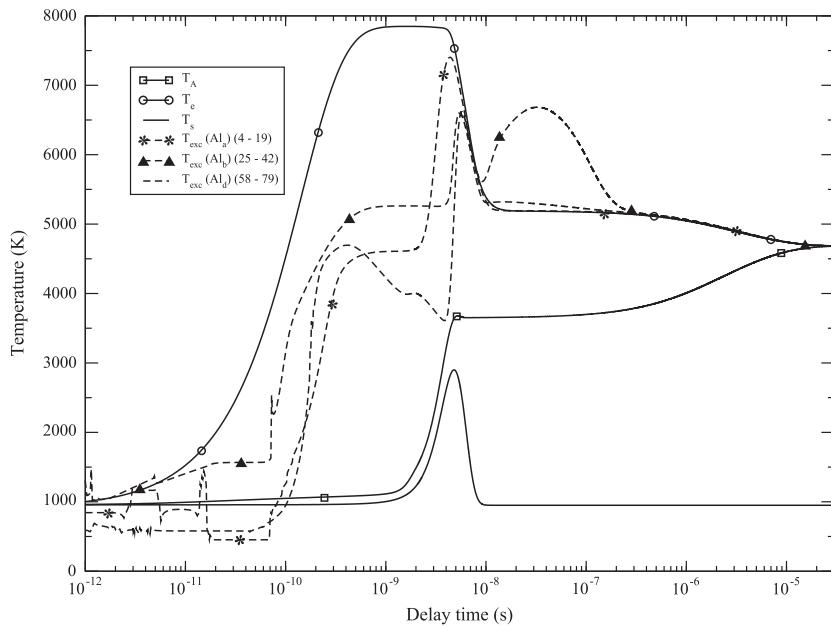
**Fig. 8.**  $\text{Al}^{2+}$  Boltzmann plots for  $t_d = 1, 5, 10$  and  $100$  ns according to the core configuration (see Table 1) with  $T_{\max} = 2900$  K. The ionization limit of the configuration (f) is  $53.263$  eV.

As far as we know, no results reported in the literature so far can validate our model. This situation results from the focus of the LIBS diagnostic community on higher delay times owing to the difficulty in performing experiments over so short time scales. The high value of the electron density at the early phase of the ablation is a chance: it can be reasonably estimated by using Thomson scattering as already shown by Diwakar and Hahn [5]. Such an experiment is currently performed by our team.

In parallel, some improvements of our model are in progress; firstly, it must be released from the arbitrary evolution of sample

surface temperature by treating the sample-plasma interaction through the energy balance equation of the liquid and solid phases up to the aluminum critical temperature.

Secondly, some additional elementary processes must be accounted for as spontaneous emission and autoionization phenomena. The latter mechanism may play a role inasmuch as the Al atoms core configurations  $3s3p\ 3P$  and  $3s3p\ 1P$  correspond in most cases to excitation energy higher than the first ionization limit and lower than the excitation energy of the  $\text{Al}^+$  first excited state. Higher ionization degree at same delay times may be consequently expected. Typical



**Fig. 9.** Time evolution of the excitation temperature  $T_{\text{exc}}(\text{Al}_0)$  corresponding to levels with energy belonging to  $[4.022$  eV,  $5.963$  eV],  $T_{\text{exc}}(\text{Al}_b)$  for the range  $[8.662$  eV,  $10.481$  eV] and  $T_{\text{exc}}(\text{Al}_d)$  for the interval  $[22.379$  eV,  $24.669$  eV]. The results of Fig. 2 are also displayed.

emission spectra may be deduced by involving spontaneous emission and they may be directly compared with experiments performed under moderate laser flux density.

Thirdly, for the species considered in the present model, the assumption of hydrogenlike behavior was necessary to form a complete set of cross sections. Aluminum atoms and ions are far from behaving in such a way. Another more realistic set of cross sections will be shortly identified in the frame of our current collaboration with the scientific community involved in quantum calculations.

Finally, a total or partial validation of the model will require performing experiments under weak fluence conditions which avoids the formation of droplets during the irradiance. Consequently, the situation will remain rather simple from the aerodynamic point of view and consistent with our geometric approach.

### Acknowledgments

The authors wish to thank the "Région Haute-Normandie" (contract no. 922/2000A/00112) and the IEFE Institute (Institut Energie, Fluides, Environnement) in France for their financial support.

### References

- [1] C. Aragon, J.-A. Aguilera, Characterization of laser-induced plasmas by optical emission spectroscopy: a review of experiments and methods, *Spectrochim. Acta Part B* 63 (2008) 893–916.
- [2] R. Noll, H. Bette, A. Brysch, M. Kraushaar, I. Mönch, L. Peter, V. Sturm, Laser-induced breakdown spectrometry – applications for production control and quality assurance in the steel industry, *Spectrochim. Acta Part B* 56 (2001) 637–649.
- [3] H.C. Liu, X.L. Mao, J.H. Yoo, R.E. Russo, Early phase laser induced plasma diagnostics and mass removal during single-pulse laser ablation of silicon, *Spectrochim. Acta Part B* 54 (1999) 1607–1624.
- [4] A. De Giacomo, Experimental characterization of metallic titanium laser-induced plasma by time and space resolved optical emission spectroscopy, *Spectrochim. Acta Part B* 58 (2003) 71–83.
- [5] P.K. Diwakar, D.W. Hahn, Study of early laser-induced plasma dynamics: transient electron density gradients via Thomson scattering and Stark broadening, and the implications on laser-induced breakdown spectroscopy measurements, *Spectrochim. Acta Part B* 63 (2008) 1038–1046.
- [6] M. Capitelli, F. Capitelli, A. Eletschkii, Non-equilibrium and equilibrium problems in laser-induced plasmas, *Spectrochim. Acta Part B* 55 (2000) 559–574.
- [7] E. Tognoni, G. Cristoforetti, S. Legnaioli, V. Palleschi, Calibration-free laser-induced breakdown spectroscopy: state of the art, *Spectrochim. Acta Part B* 65 (2010) 1–14.
- [8] G. Cristoforetti, A. De Giacomo, M. Dell'Aglio, S. Legnaioli, E. Tognoni, V. Palleschi, N. Omenetto, Local thermodynamic equilibrium in laser-induced breakdown spectroscopy: beyond the Mc Whirter criterion, *Spectrochim. Acta Part B* 65 (2010) 86–95.
- [9] J. van Dijk, G.M.W. Kroesen, A. Bogaerts, Plasma modelling and numerical simulation, *J. Phys. D Appl. Phys.* 42 (2009) 190301.
- [10] V.I. Mazhukin, V.V. Nossov, I. Smurov, Modeling of plasma-controlled surface evaporation and condensation of Al target under pulsed laser irradiation in the nanosecond regime, *Appl. Surf. Sci.* 253 (2007) 7686–7691.
- [11] S. Amoruso, Modeling of UV pulsed-laser ablation of metallic targets, *Appl. Phys. A* 69 (1999) 323–332.
- [12] A. Bogaerts, Z. Chen, Effect of laser parameters on laser ablation and laser-induced plasma formation: a numerical modeling investigation, *Spectrochim. Acta Part B* 30 (2005) 1280–1307.
- [13] V.I. Mazhukin, V.V. Nossov, M.G. Nickiforov, I. Smurov, Optical breakdown in aluminum vapor induced by ultraviolet laser radiation, *J. Appl. Phys.* 93 (2003) 56–66.
- [14] G.M. Weyl, D. Rosen, Laser-induced breakdown in argon at 0.35 μm: theory and experiments, *Phys. Rev. A* 31 (1985) 2300–2313.
- [15] V.I. Babushok, F.C. DeLucia, P.J. Dagdigian, M.J. Nusca, A.W. Mizolek, Kinetic modeling of the laser-induced breakdown spectroscopy plume from metallic lead, *Appl. Opt.* 42 (2003) 5947–5962.
- [16] A. Bultel, B.G. Chéron, A. Bourdon, O. Motapon, I.F. Schneider, Collisional-radiative model in air for earth re-entry problems, *Phys. Plasma* 13 (2006) 043502.
- [17] I.B. Gornushkin, U. Panne, Radiative models of laser-induced plasma and pump-probe diagnostics relevant to laser-induced plasma spectroscopy, *Spectrochim. Acta Part B* 65 (2010) 345–359.
- [18] M. Panesi, T. Magin, A. Bourdon, A. Bultel, O. Chazot, Fire II flight experiment analysis by means of a collisional-radiative model, *J. Thermophys. Heat Transfer* 23 (2009) 236–248.
- [19] L.M. Cabalin, J.J. Laserna, Experimental determination of laser-induced breakdown threshold of metals under nanosecond Q-switched laser operation, *Spectrochim. Acta Part B* 53 (1998) 723–730.
- [20] J.M. Fishburn, M.J. Withford, D.W. Coutts, J.A. Piper, Study of the fluence dependent interplay between laser-induced material removal mechanisms in metals: vaporization, melt, displacement and melt ejection, *Appl. Surf. Sci.* 252 (2006) 5182–5188.
- [21] C. Porneala, D.A. Willis, Observation of nanosecond laser-induced phase explosion in aluminum, *Appl. Phys. Lett.* 89 (2006) 211121.
- [22] V. Morel, A. Bultel, B.G. Chéron, Modeling of Aluminum Laser-Induced Plasma, Escampig, Granada, Spain, 2008 15–19 July.
- [23] C.B. Alcock, V.P. Itkin, M.K. Horrigan, Vapour pressure equations for the metallic elements: 298–2500 K, *Can. Metall. Q.* 23 (1984) 309–313.
- [24] V. Morel, A. Bultel, B.G. Chéron, The critical temperature of aluminum, *Int. J. Thermophys.* 30 (2009) 1853–1863.
- [25] V.I. Mazhukin, V.V. Nossov, I. Smurov, Analysis of laser-induced evaporation of Al target under conditions of vapour plasma formation, *Thin Solid Films* 453–454 (2004) 353–361.
- [26] I. Alkhatov, O. Lindau, A. Topolnikov, R. Mettin, N. Vakhitova, W. Lauterborn, Collapse and rebound of a laser-induced cavitation bubble, *Phys. Fluids* 13 (2001) 2805–2819.
- [27] A. Bultel, B. van Ootegem, A. Bourdon, P. Vervisch, Influence of Ar<sub>2</sub><sup>+</sup> in an argon collisional-radiative model, *Phys. Rev. E* 65 (2002) 046406.
- [28] D. Salzmann, *Atomic Physics in Hot Plasmas*, Oxford University Press, New York, 1998.
- [29] A. Müsing, U. Riedel, J. Warnatz, W. Herden, H. Ridderbusch, Laser-induced breakdown in air and behind droplets: a detailed Monte-Carlo simulation, *Proc. Combust. Inst.* 31 (2007) 3007–3014.
- [30] C. Grey-Morgan, Laser-induced breakdown of gases, *Rep. Prog. Phys.* 38 (1975) 621–665.
- [31] S. Amoruso, R. Buzzese, N. Spinelli, R. Velotta, Characterization of laser-ablation plasmas, *J. Phys. B* 32 (1999) R131–R172.
- [32] S. Amoruso, M. Armenante, V. Berardi, R. Buzzese, N. Spinelli, Absorption and saturation mechanisms in aluminium laser ablated plasmas, *Appl. Phys. A* 65 (1997) 265–271.
- [33] D.I. Rosen, D.E. Hastings, G.M. Weyl, Coupling of pulsed 0.35 μm laser radiation to titanium alloys, *J. Appl. Phys.* 53 (1982) 5882–5890.
- [34] A.L. Thomann, C. Boulmer-Leborgne, B. Dubreuil, A contribution to the understanding of the plasma ignition mechanism above a metal target under UV laser irradiation, *Plasma Sources Sci. Technol.* 6 (1997) 298–306.
- [35] H.W. Drawin, *Collision and Transport Cross-Sections*, Association-Euratom-C.E.A., 1966 Report EUR-CEA-FC 383 (revised).
- [36] A. Kimura, H. Kobayashi, M. Nishida, P. Valentini, Calculation of collisional and radiative transition probabilities between excited argon levels, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* 34 (1985) 189–215.
- [37] A.J. MacLeod, The efficient computation of some generalised exponential integrals, *J. Comput. Appl. Math.* 148 (2002) 363–374.
- [38] A. Decoster, P.A. Markowich, B. Perthame, *Modeling of Collisions*, Gauthier-Villars, 1998 Paris.
- [39] Y.I. Ryabikh, I.I. Fabrikant, Partial-wave analysis of low-energy electron scattering by aluminium atoms, *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* 14 (1981) 349–356.
- [40] A. Jablonski, F. Salvat, C.J. Powell, Comparison of electron scattering cross sections calculated from two commonly used atomic potentials, *J. Phys. Chem. Ref. Data* 33 (2004) 409–451.
- [41] P.N. Brown, G.D. Byrne, A.C. Hindmarsh, VODE: a variable coefficient ODE solver, *SIAM J. Sci. Stat. Comput.* 10 (1989) 1038–1051.
- [42] M. Capitelli, A. Casavola, G. Colonna, A. De Giacomo, Laser-induced plasma expansion: theoretical and experimental aspects, *Spectrochim. Acta Part B* 59 (2004) 271–289.
- [43] S. Blairs, M.H. Abassi, Correlation between surface tension and critical temperatures of liquid metals, *J. Colloid Interface Sci.* 304 (2006) 549–553.
- [44] A.H. Galmed, M.A. Harith, Temporal follow up of the LTE conditions in aluminum laser-induced plasma at different laser energies, *Appl. Phys. B* 91 (2008) 651–660.
- [45] S.S. Harilal, C.V. Bindhu, M.S. Tillack, F. Najmabadi, A.C. Gaeris, Internal structure and expansion dynamics of laser ablation plumes into ambient gases, *J. Appl. Phys.* 93 (2003) 2380–2388.



## Annexe G

### *Temporal description of aluminum laser-induced plasmas by means of a collisional-radiative model*

# Temporal description of aluminum laser-induced plasmas by means of a collisional-radiative model

**Vincent Morel, Arnaud Bultel and Bruno G. Chéron**

UMR CNRS 6614 CORIA, Université de Rouen, Avenue de l'Université, BP12, 76801  
Saint-Etienne du Rouvray, France

E-mail: [vincent.morel@coria.fr](mailto:vincent.morel@coria.fr)

**Abstract.** A 0D numerical approach including a Collisional-Radiative model is elaborated in the purpose of describing the behavior of the nascent plasma resulting from the interaction between a laser pulse ( $\lambda = 532$  nm,  $\tau = 4$  ns and  $F = 6.5 \text{ J cm}^{-2}$ ) with an aluminum sample. The species considered are Al,  $\text{Al}^+$ ,  $\text{Al}^{2+}$  and  $\text{Al}^{3+}$  on their different excited states and free electrons. Both groups of particles are characterized by their translation temperature in thermal non-equilibrium state. Besides, each population density is assumed to be in chemical non-equilibrium and behaves freely through the seven involved elementary processes (electron impact induced excitation and ionization, elastic collisions, multi-photon ionization, inverse laser Bremsstrahlung, direct electron Bremsstrahlung and spontaneous emission). Atoms passing from sample to gas phase are described by considering classical vaporization phenomena so that the surface temperature is limited to values less than the critical point. The relative role of the elementary processes is discussed and the time-evolution of the excitation of the species is analyzed.

## 1. Introduction

The emergence of lasers at the beginning of the 1960's provided the ability to diagnose solid samples by the LIBS (Laser-Induced Breakdown Spectroscopy) technique which consists in analyzing the spectra emitted by the plasma induced by interaction between a nanosecond laser pulse and a sample [1]. According to the level of the laser fluence  $F$ , two thresholds can be observed. The first one corresponds to the minimum value to observe the breakdown ( $F_0 \approx 1 \text{ J cm}^{-2}$  for aluminum [2]) and the second one corresponds to the observation of an explosion phase where the surface temperature reaches at least the critical point ( $F_1 \approx 7 \text{ J cm}^{-2}$  [3]). This explosion phase is also characterized by formation of droplets [4]. Between  $F_0$  and  $F_1$ , the interface melts first, then evaporates and the vapor produced is ionized. The plasma formed radiates and its spectra can be analyzed.

The underlined laser-matter interaction is far from being completely understood even when  $F \in [F_0, F_1]$ . In particular, the mechanism leading to an excitation equilibrium is not well known. This question is crucial because the treatment of LIBS signals is generally based on equilibrium assumptions [5]. The present contribution reports the elaboration of a two-temperatures Collisional-Radiative (CR) model devoted to the verification of these assumptions in the case of a laser pulse ( $\lambda = 532$  nm,  $\tau = 4$  ns and  $F = 6.5 \text{ J cm}^{-2}$ ) impinging an aluminum sample [6]. This CR model takes into account the seven main elementary processes (electron impact induced excitation and ionization, elastic collisions, multi-photon ionization, inverse

laser Bremsstrahlung, direct electron Bremsstrahlung and spontaneous emission) influencing the number density of the 106 states of Al,  $\text{Al}^+$ ,  $\text{Al}^{2+}$  and  $\text{Al}^{3+}$  considered.

## 2. Al excited states, assumptions and processes

The test-case studied corresponds to the classical interaction between a nanosecond Nd:YAG laser pulse assumed of the Gaussian type on an aluminum sample. Equations modeling the heating (melting, then vaporization) of the sample are not solved. The surface temperature is assumed to follow such a Gaussian evolution in time with a maximum  $T_{max}$  less than the critical temperature  $T_c = 6700$  K [7]. Moreover, the atom flux density  $\varphi_A$  emerging from the interface is assumed to follow the Hertz-Knudsen law with a saturated vapor pressure given at  $T_s$  [8]. These atoms form the Knudsen layer whose characteristics allow a free expansion of the vapor according to a velocity close to the thermal heavy mean velocity [9].

In order to avoid wasteful calculations, the number of aluminum excited states is reduced with respect to the actual states. Levels of close energy are grouped according to their core configuration. The resulting energy spectrum contains finally 106 fictitious levels which are listed in part in table 1.

**Table 1.** Some of the aluminum states considered in the present CR model. No "0" figures the species ground state.  $E$  is the energy,  $g$  is the statistical weight and  $\ell$  is the angular momentum quantum number.

Species	$i$	$E$ (eV)	Core config.	$g$	$\ell$	Species	$i$	$E$ (eV)	Core config.	$g$	$\ell$
Al(Z=0)	0	00.000	$3s^2$	2	1	$\text{Al}^+(Z=1)$	0	05.986	3s	1	0
	2	03.143	$3s^2$	2	0		13	21.578	3s	12	1
	6	04.827	$3s^2$	10	2		35	24.669	3s	14	3
	12	05.600	$3s^2$	38	4		36	16.584	3p	5	1
	18	05.963	$3s^2$	150	2		41	24.649	3p	15	2
	19	03.608	$3s\ 3p\ ^3P$	12	1		0	24.815	$2p^6$	2	0
	26	08.772	$3s\ 3p\ ^3P$	6	1		7	45.971	$2p^6$	2	0
	32	09.636	$3s\ 3p\ ^3P$	16	1		13	49.782	$2p^6$	10	2
	36	10.019	$3s\ 3p\ ^3P$	16	1		17	50.757	$2p^6$	64	5
	41	10.481	$3s\ 3p\ ^3P$	24	1		20	51.750	$2p^6$	54	5
	42	10.369	$3s\ 3p\ ^1P$	16	1		0	53.263	$2p^5$	1	1

The dynamics of these states results from the following elementary processes:

- (i) *multi-photon ionization (MPI)*. The vapor produced by the sample heating can be ionized by multi-photon ionization. This process is taken into account under the form proposed by Müsing *et al.* [10].
- (ii) *inverse Bremsstrahlung (IB)*. Inverse Bremsstrahlung phenomenon can heat electron gas during the laser pulse: its contribution is accounted for [11].
- (iii) *electron-induced excitation (EE) and ionization (EI)*. The increase of electron temperature  $T_e$  and density  $n_e$  promotes electron-induced excitation and ionization. The forms proposed by Drawin [12] for the cross sections (depending on the angular momentum quantum number  $\ell$ , see table 1) are used.

- (iv) *elastic collisions (EC)*. Owing to the increase of  $T_e$  by MPI and IB processes, thermal non equilibrium between heavies (with the temperature  $T_A$ ) and electrons occurs. The resulting elastic collisions play a role and the form given by Decoster *et al.* [13] is adopted for their contribution.
- (v) *spontaneous emission (SE)*. The increase of the excited states population density promotes spontaneous emission. The related probabilities obtained from the NIST database [14] are used and corrected by an escape factor resulting from the optical thickness of the plasma. Escape factors are calculated assuming a Stark line broadening.
- (vi) *electron thermal Bremsstrahlung (BE)*. The direct Bremsstrahlung [15] is also accounted for owing to its experimental observation at early time [16].

### 3. CR model and balance equations

The previous elementary processes are involved in the collisional-radiative term of the classical balance equation [17] where the atom flux resulting from the vaporization is taken into account. The electrons and heavies energy balance equations are coupled with the previous ones. We do not reproduce here any details (cf. [6]), but we obtain finally the following equations:

$$\frac{dT_e}{dt} = \frac{2}{3 k_B n_e} \left( P_e + \frac{\varphi_e(t)}{\Delta(t)} \right) - \frac{T_e}{n_e} \frac{dn_e}{dt} \quad (1)$$

$$\frac{dT_A}{dt} = \frac{2}{3 k_B \sum_{Z,i} [\text{Al}_i^{Z+}]} \left[ P_A + \frac{\varphi_A(t)}{\Delta(t)} - \sum_{Z,i} \left( \frac{3}{2} k_B T_A + E_{Z,i} \right) \frac{d[\text{Al}_i^{Z+}]}{dt} \right] \quad (2)$$

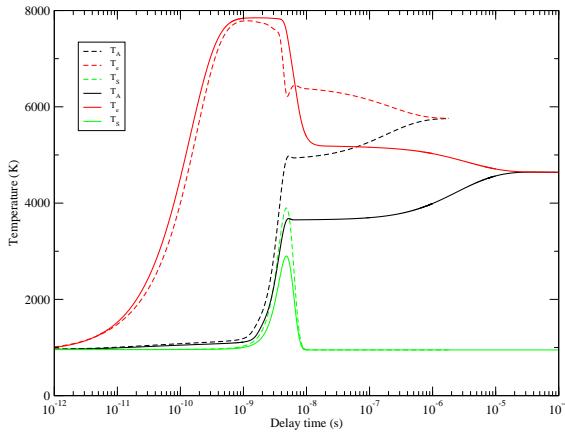
In these equations,  $\varphi_e(t)$  is the electron flux density emerging from the surface,  $\Delta(t)$  is the instantaneous thickness of the plasma layer, and  $P_A$  and  $P_e$  are the source terms involving the elementary processes listed in section 2.

### 4. Results

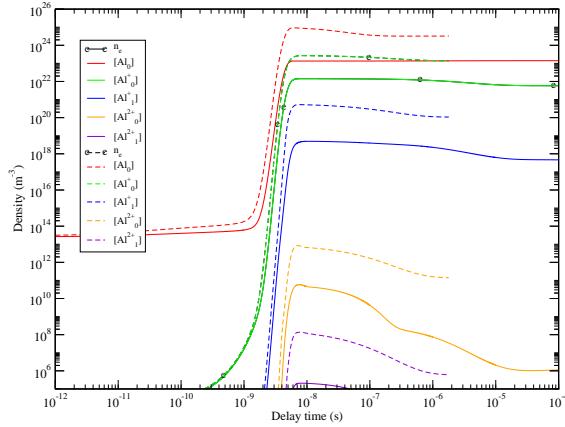
Two typical values for  $T_{max}$  (3000 and 4000 K) are adopted. The resulting time-evolutions for  $T_A$  and  $T_e$  are displayed on figure 1. We observe two consecutive phases: the first one which corresponds to the plasma formation is followed by a second phase where the plasma recombines. The transition between both phases takes place when the laser flux is maximum. At long time, the thermal equilibrium is reached:  $T_A$  and  $T_e$  are equal when  $t = \tau_{eq} \approx 1 \mu\text{s}$  with  $T_{max} = 4000 \text{ K}$  and when  $t = \tau_{eq} \approx 20 \mu\text{s}$  with  $T_{max} = 3000 \text{ K}$ .

Figures 2a and 2b display the evolution in time of the elementary processes contributions to  $dT_e/dt$  (figure 2a) and  $dT_A/dt$  (figure 2b) in equations 1 and 2 when  $T_{max} = 3000 \text{ K}$ . We can notice the preponderant influence of the multi-photon ionization phenomena on  $T_e$  during the plasma formation. The increase of  $T_e$  is often ascribed to inverse Bremsstrahlung: we can see that IB phenomena play a minor role. Except MPI phenomena, the radiative processes can be considered as almost negligible: in particular, the contribution of electron thermal Bremsstrahlung is rather weak. Among the collisional contributions listed above, only superelastic electron-induced collisions and elastic collisions play a role: the first type of collisions promotes energy gain to the electron gas whereas the second type induces electron energy losses. Both types are almost counterbalanced: the  $T_e$  decrease is slow.

The evolution of  $T_A$  follows a different dynamics. Figure 2b shows the preponderance of the energy flux from the sample surface until the recombination starts. MPI phenomena do not play a noticeable role. This is common to all radiative phenomena: in particular, spontaneous emission is negligible. At long time, the elementary processes play on  $T_A$  a reverse role with respect to the case of  $T_e$ . When the laser pulse ends, the interface is no longer acting on the



**Figure 1.** Time-evolution obtained for  $T_A$  and  $T_e$  when  $T_s$  evolves with  $T_{max} = 3000$  K (continuous lines) or 4000 K (dashed lines).

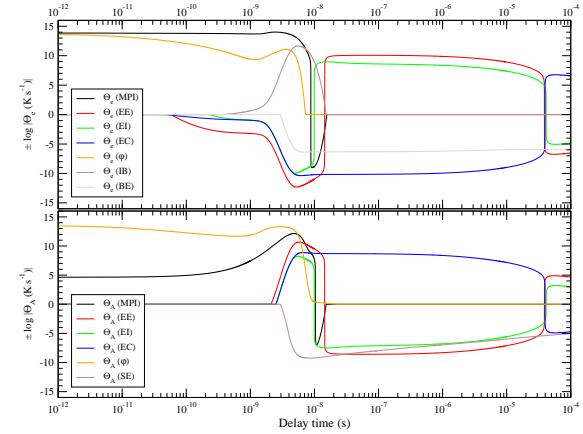


**Figure 3.** Time-evolution of the number density of some states. The laser pulse maximum corresponds to a delay time of 5 ns (continuous lines:  $T_{max} = 3000$  K, dashed lines:  $T_{max} = 4000$  K).

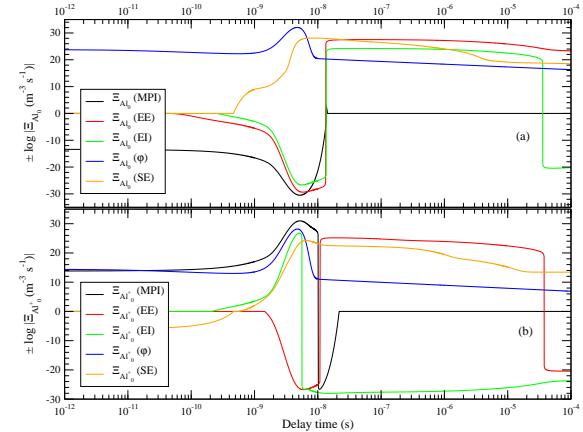
plasma. Electrons and heavies are alone: this situation leads to their mutual interaction and to thermal equilibrium owing to elastic collisions.

The characteristic time scale  $\tau_{eq}$  required to reach thermal equilibrium is shortened when  $T_{max}$  is higher. This is due to the higher levels of population obtained under these conditions. Figure 3 illustrates the influence of  $T_{max}$  on these levels. It is interesting to note that the maximum number density obtained for Al ground state with  $T_{max} = 3000$  K is of  $10^{23} \text{ m}^{-3}$  approximately whereas this density reaches  $10^{25} \text{ m}^{-3}$  with  $T_{max} = 4000$  K. This strong increase of the plasma density when  $T_{max}$  is higher leads to the elastic collisions frequency increase and to an important reduction of  $\tau_{eq}$ .

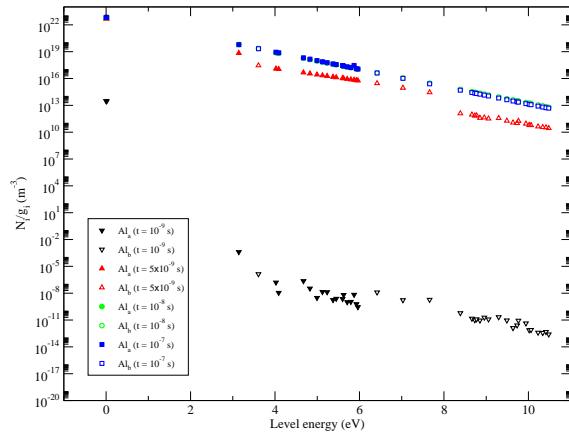
Moreover, figure 3 shows the absence of temporal symmetry between the production of the plasma and its recombination. The plasma is indeed formed during the increase of the laser flux



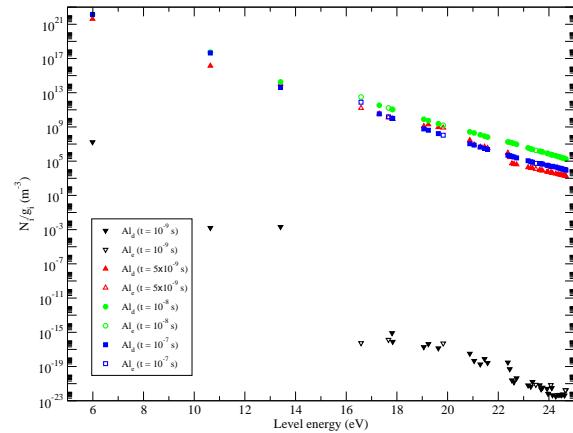
**Figure 2.** (a) evolution in time of the contributions to  $dT_e/dt$  (equation 1). (b) evolution of the contributions to  $dT_A/dt$  (equation 2).  $T_{max} = 3000$  K.



**Figure 4.** Evolution in time of the elementary processes contributions to the Al (a) and  $\text{Al}^+$  (b) ground states population density when  $T_{max} = 3000$  K.



**Figure 5.** Al Boltzmann plots for  $t = 1, 5, 10$  and  $100$  ns according to the core configuration with  $T_{max} = 3000$  K.



**Figure 6.** Same as figure 5, but for  $\text{Al}^+$ .

in few nanoseconds, whereas its recombination lasts some microseconds.

Figure 3 gives also an insight into the behavior of  $n_e$  when  $T_{max}$  increases. The maximum electron density is concomitant with the maximum laser flux. When  $T_{max} = 3000$  K, this maximum corresponds to  $n_e \approx 10^{22} \text{ m}^{-3}$  whereas  $n_e \approx 10^{23} \text{ m}^{-3}$  with  $T_{max} = 4000$  K. In both cases, the plasma ionization degree remains smaller than 10%. However, additional calculations performed with higher values of  $T_{max}$  put forward the rapid increase of the ionization degree with the interface maximum temperature: the plasma can even be totally ionized.

It is worth to further analyze the elementary processes contribution. Figures 4a and 4b display their time-dependent influence on the Al and  $\text{Al}^+$  ground states number density respectively. The time scales non symmetry between the plasma creation and relaxation is again observed. Besides, figure 4a illustrates the fundamental role played by vaporization from the sample. The atoms reaching the gas phase are then ionized through MPI phenomena. The end of the laser pulse induces the relaxation of the excited states: this relaxation plays a preponderant role in the Al ground state dynamics. Three-body recombination does not play a significant role and spontaneous emission remains a minor process owing to the escape factors weak value.

The  $\text{Al}^+$  ground state behaves of course in a different way. The vaporization from the surface is not the main source of  $\text{Al}^+$  ions: this role is in this case played by multi-photon ionization from the Al ground state. The electron-induced processes do not play a significant role, except after the end of the laser pulse. When  $t \gg \tau$ , the electron excitation of  $\text{Al}^+$  decreases and the contribution of electron-induced ionization is negative: the plasma is recombining. All the time, spontaneous emission is totally negligible in the present case.

We have previously mentioned that LIBS signals analysis is in part based on equilibrium hypotheses: in particular, the excitation is often assumed in equilibrium. The present CR model is a particularly suitable tool to verify the validity of this assumption. We have indeed derive Boltzmann plots from our results at different delay times. Figures 5 and 6 illustrate the results obtained for Al and  $\text{Al}^+$  respectively. The situation remains far from excitation equilibrium from early time until the laser pulse end. This is the result of the steep ionization of the gas under laser flux and of the interface vaporization. After, electron-induced collisions become sufficiently efficient for ensuring excitation equilibrium: the Boltzmann plot displays a characteristic linear distribution. Long after the pulse, we can note a weak decrease of the number densities well coupled to each other. In the same time, the depopulation of the  $\text{Al}^+$  excited states is stronger owing to the plasma recombination (see figure 6). Even for  $\text{Al}^+$ , the

linear distribution is obvious. However, we have to comment cautiously these results owing to the large ranges over which they are shown: a seemingly linear form does not mean that equilibrium is necessarily reached. The excitation temperature  $T_{exc}$  defined over a set  $\Sigma$  of well coupled excited states [17] such that:

$$T_{exc}(\text{Al}^{Z+}) = -\frac{1}{k_B \left[ \frac{d \ln([\text{Al}_i^{Z+}] / g_i)}{dE_i} \right]_\Sigma} \quad (3)$$

allows a largely better estimate of the excitation state. Calculations show that  $T_{exc}$  is approximately equal to  $T_e$  for  $t \geq 0.1 \mu\text{s}$ : as a result, the excited states can be then considered in equilibrium with electrons.

## 5. Conclusion

The behavior of a plasma produced by a nanosecond laser pulse on an aluminum sample is modeled by using a 0D approach involving a Collisional-Radiative (CR) model. Free electrons and heavy species temperatures are assumed different. About hundred excited states of Al,  $\text{Al}^+$ ,  $\text{Al}^{2+}$  and  $\text{Al}^{3+}$  are considered. These species are assumed to behave freely through seven different collisional and radiative elementary processes. A simplified approach is adopted: the interface temperature evolves in time independently of the laser flux.

The results put forward the fundamental role played by vaporization from the interface and multi-photon ionization in the formation of the plasma. Even if the electron parameters reach high levels, the influence of free electrons on this formation is rather weak in our conditions. The electron temperature depends weakly on inverse Bremsstrahlung phenomena. When the laser pulse ends, the relaxation of the plasma takes place until equilibrium mainly through electron-induced processes.

## Acknowledgments

The authors wish to thank the "Région Haute-Normandie" and the IEFE French Institute (Institut Energie, Fluide & Environnement) in France for their financial support.

## References

- [1] Noll R, Bette H, Brysch A, Kraushaar M, Mnch I, Peter L, Sturm V 2001 *Spectrochimica Acta Part B* **56** 637-649
- [2] Cabalin L M, Laserna J J 1998 *Spectrochimica Acta Part B* **53** 723-730
- [3] Fishburn J M, Withford M J, Coutts D W, Piper J A 2006 *Applied Surface Science* **252** 5182-5188
- [4] Lu Q, Mao S S, Mao X, Russo R E 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 17 3072-3074
- [5] Cristoforetti G, De Giacomo A, Dell'Aglio M, Legnaioli S, Tognoni E, Palleschi V, Omenetto N 2010 *Spectrochimica Acta Part B* **65** 86-95
- [6] Morel V, Bultel A, Chéron B G 2010 *Spectrochimica Acta Part B* doi:10.1016/j.sab.2010.08.002
- [7] Morel V, Bultel A, Chéron B G 2009 *Int. J. Thermophys.* **30** 1853-1863
- [8] Akhatov I, Lindau O, Topolnikov A, Mettin R, Vakhitova N, Lauterborn W 2001 *Phys. Fluids* **13** 10 2805-2819
- [9] Gusarov A V, Smurov I 2002 *Phys. Fluids* **14** 12, 4242-4255
- [10] Müsing A, Riedel U, Warnatz J, Herden W, Ridderbusch H 2007 *Proceedings of the combustion institute* **31** 3007-3014
- [11] Amoruso S, Armenante M, Berardi V, Brizzese R, Spinelli N 1997 *Appl. Phys. A* **65** 265-271
- [12] Drawin H W 1966 *Collision and Transport Cross-Sections* Association-Euratom-C.E.A. Technical report (revised) EUR-CEA-FC 383, 656
- [13] Decoster A, Markowich P A, Perthame B 1998 *Modeling of Collisions* Gauthier-Villars, Paris
- [14] <http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/levelsform.html>
- [15] Koch H W, Motz J W 1959 *Rev. Mod. Phys.* **31** 4 920-956
- [16] Morel V, Bultel A, Chéron B G 2010 *Anal. Bioanal. Chem.* in reviewing
- [17] Bultel A, van Ootegem B, Bourdon A and Vervisch P 2002 *Phys. Rev. E* **65** 046406



# Bibliographie

- [1] Abhilasha et Thareja R. K., *Optical emission studies of molecular carbon ( $C_2$ )*, Phys. Lett. A **184**, 99–103, (1993). page 22
- [2] Aguilera J. A. et Aragón C., *Characterization of a laser-induced plasma by spatially resolved spectroscopy of neutral atom and ion emissions. Comparison of local and spatially integrated measurements*, Spectrochim. Acta B **59**, 1861–1876, (2004). page 33
- [3] Akhatov I., Lindau O., Topolnikov A., Mettin R., Vakhitova N. et Lauterborn W., *Collapse and rebound of laser-induced cavitation bubble*, Phys. Fluids **13**, 2805–2819, (2001). page 17
- [4] Alcock C. B., Itkin V. P. et Horrigan M. K., *Vapour pressure equations for the metallic elements : 298-2500 K*, Can. Metall. Quart. **23**, 309–313, (1984). pages 55, 80, 83, 221, 226 et 230
- [5] Allen A. W., Blaha M., Jones W. W., Sanchez A. et Griem H. R., *Stark-broadening measurement and calculations for a singly ionized aluminum line*, Phys. Rev. A **11**, 477–479, (1975). pages 143, 144, 152 et 217
- [6] Alves L. L., Gousset G. et Ferreira C. M., *A collisional-radiative model for microwave discharges in helium at low and intermediate pressures*, J. Phys. D : Appl. Phys. **25**, 1713–1732, (1992). page 38
- [7] Amoruso S., *Modeling of UV pulsed-laser ablation of metallic targets*, Appl. Phys. A **69**, 323–332, (1999). pages 19, 28, 30, 31, 33, 36 et 129
- [8] Amoruso S., Armenante M., Berardi V., Bruzzese R. et Spinelli N., *Absorption and saturation mechanisms in aluminium laser ablated plasmas*, Appl. Phys. A **65**, 265–271, (1997). pages 19 et 60
- [9] Amoruso S., Ausanio G., Barone A. C., Bruzzese R., Gragnaniello L., Vitiello M. et Wang X., *Ultrashort laser ablation of solid matter in vacuum : a comparison between the microsecond and femtosecond regimes*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **38**, L329–L338, (2005). page 41
- [10] Amoruso S., Bruzzese R., Spinelli N. et Velotta R., *Characterization of laser-ablation plasmas*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **32**, R131–R172, (1999). pages 30 et 41
- [11] Anisimov S. I., Kapeliovich B. L. et Perel'man T. L., *Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses*, Sov. Phys.-JETP **39**, 375–377, (1974). page 43
- [12] Aragón C. et Aguilera J. A., *Characterization of laser induced plasmas by optical emission spectroscopy : a review of experiments and methods*, Spectrochim. Acta B **63**, 893–916, (2008). page 34

- [13] Archibong E. F. et Thakkar A. J., *Finite-field many-body-perturbation-theory calculation of the static hyperpolarizabilities and polarizabilities of Mg, Al<sup>+</sup>, and Ca*, Phys. Rev. A **44**, 5478–5484, (1991). pages 186 et 187
- [14] Augst S., Meyerhofer D. D., Strickland D. et Chin S. L., *Laser ionization of noble gases by Coulomb-barrier suppression*, J. Opt. Soc. Am. B **8**, 858–867, (1991). page 26
- [15] Babushok V. I., DeLucia Jr. F. C., Dagdigian P. J., Nusca M. J. et Mizolek A. W., *Kinetic modeling of the laser-induced breakdown spectroscopy plume from metallic lead*, Appl. Optics **42**, 5947–5962, (2003). pages 32 et 37
- [16] Bar-Shalom A., Klapisch M. et Oreg J., *HULLAC, an integrated computer package for atomic processes in plasmas*, J. Quant. Spectrosc. Ra. **71**, 169–188, (2001). page 69
- [17] Barthélémy O., Margot J., Laville S., Vidal F., Chaker M., Le Drogoff B., Johnston T. W. et Sabsabi M., *Investigation of the state of local thermodynamic equilibrium of a laser-produced aluminum plasma*, Appl. Spectrosc. **59**, 529–536, (2005). page 33
- [18] Basko M., Löwer T., Kondrashov V. N., Kendl A., Sigel R. et Meyer-ter Vehn J., *Optical probing of laser-induced indirectly driven shock waves in aluminum*, Phys. Rev. E **56**, 1019–1031, (1997). page 129
- [19] Bennett H. E., Silver M. et Ashley E. J., *Infrared reflectance of aluminum evaporated in ultra-high vacuum*, J. Opt. Soc. Am. **53**, 1089–1095, (1963). pages 24 et 79
- [20] Bhatnagar P. L., Gross E. P. et Krook M., *A model for collision processes in gases. I. Small amplitude processes in charged and neutral one-component systems*, Phys. Rev. **94**, 511–525, (1954). page 19
- [21] Binder K., *Monte Carlo calculation of the surface tension for two- and three-dimensional lattice-gas models*, Phys. Rev. A **25**, 1699–1709, (1982). page 81
- [22] Bogaerts A. et Chen Z., *Effect of laser parameters on laser ablation and laser-induced plasma formation : a numerical modeling investigation*, Spectrochim. Acta B **60**, 1280–1307, (2005). pages 29, 30, 32, 36, 60 et 94
- [23] Bogaerts A., Chen Z., Gijbels R. et Vertes A., *Laser ablation for analytical sampling : what can we learn from modeling ?*, Spectrochim. Acta B **58**, 1867–1893, (2003). pages 28, 29, 30, 32, 33, 36 et 94
- [24] Born M. et Heisenberg W., *Über den Einfluß der Deformierbarkeit der Ionen auf optische und chemische Konstanten*, Z. Physik **23**, 388–410, (1924). pages 186 et 187
- [25] Brech F. et Cross L., *Optical micromission stimulated by a ruby laser*, Appl. Spectrosc. **16**, 59, (1962). pages 3 et 10
- [26] Brown P. N., Byrne G. D. et Hindmarsh A. C., *VODE : a variable coefficient ODE solver*, SIAM J. Sci. Stat. Comput. **10**, 1038–1051, (1989). page 77
- [27] Bruhat G., *Thermodynamique*, Masson & Cie, (1968). page 9
- [28] Brussaard P. J. et van de Hulst H. C., *Approximation formulas for nonrelativistic Bremsstrahlung and average Gaunt factors of a Maxwellian electron gas*, Rev. Mod. Phys. **34**, 507–520, (1962). page 166
- [29] Bulajic D., Corsi M., Cristoforetti G., Legnaioli S., Palleschi V., Salvetti A. et Tognoni E., *A procedure for correcting self-absorption in calibration free-laser induced breakdown spectroscopy*, Spectrochim. Acta B **57**, 339–353, (2002). page 33

- [30] Bulgakova N. M. et Bourakov I. M., *Phase explosion under ultrashort pulsed laser ablation : modeling with analysis of metastable state of melt*, Appl. Surf. Sci. **197-198**, 41–44, (2002). page 42
- [31] Bulgakova N. M. et Bulgakov A. V., *Pulsed laser ablation of solids : transition from normal vaporization to phase explosion*, Appl. Phys. A **73**, 199–208, (2001). page 17
- [32] Bultel A., Chéron B. G., Bourdon A., Motapon O. et Schneider I. F., *Collisional-radiative model in air for earth re-entry problems*, Phys. Plasmas **13**, 043502, (2006). pages 10, 35 et 38
- [33] Bultel A., van Ootegem B., Bourdon A. et Vervisch P., *Influence of Ar<sub>2</sub><sup>+</sup> in an argon collisional-radiative model*, Phys. Rev. E **65**, 046406, (2002). page 35
- [34] Cabalín L. M. et Laserna J. J., *Experimental determination of laser induced breakdown thresholds of metals under nanosecond Q-switched laser operation*, Spectrochim. Acta B **53**, 723–730, (1998). page 14
- [35] Capitelli M., Colonna G., Catella M., Capitelli F. et Eletskii A., *On the relaxation of electron energy distribution function in LIBS plasmas*, Chem. Phys. Lett. **316**, 517–523, (2000). pages 32 et 37
- [36] Casavola A., Colonna G. et Capitelli M., *Non-equilibrium conditions during a laser induced plasma expansion*, Appl. Surf. Sci. **208-209**, 85–89, (2003). pages 19, 32, 33 et 37
- [37] Casavola A. R., Colonna G. et Capitelli M., *Kinetic model of titanium laser induced plasma expansion in nitrogen environment*, Plasma Sources Sci. Technol. **18**, 025027, (2009). pages 19, 32, 33 et 37
- [38] Casavola A. R., Colonna G., De Giacomo A., De Pascale O. et Capitelli M., *Experimental and theoretical investigation of laser-induced plasma of a titanium target*, Appl. Optics **42**, 5963–5970, (2003). pages 19, 32, 33 et 37
- [39] Cavalleri A., Sokolowski-Tinten K., Bialkowski J., Schreiner M. et von der Linde D., *Femtosecond melting and ablation of semiconductors studied with time of flight mass spectroscopy*, J. Appl. Phys. **85**, 3301–3309, (1999). page 41
- [40] Chen X. et Mazumder J., *Emission spectroscopy during excimer laser ablation of graphite*, Appl. Phys. Lett. **57**, 2178–2180, (1990). page 14
- [41] Chen Z. et Bogaerts A., *Laser ablation of Cu and plume expansion into 1 atm ambient gas*, J. Appl. Phys. **97**, 063305, (2005). page 29
- [42] Chichkov B. N., Momma C., Nolte S., von Alvensleben F. et Tünnermann A., *Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids*, Appl. Phys. A **63**, 109–115, (1996). pages 15, 17, 41 et 42
- [43] Chiow Y. C., Chang D., Lai J. et Wu G. H., *A molecular-based equation of state for simple and chainlike fluids*, Ind. Eng. Chem. Res. **38**, 4951–4958, (1999). page 82
- [44] Claeysens F., Henley S. J. et Ashfold M. N. R., *Comparison of the ablation plumes arising from ArF laser ablation of graphite, silicon, copper, and aluminum in vacuum*, J. Appl. Phys. **94**, 2203–2211, (2003). page 14
- [45] Codling K. et Frasinski L. J., *Dissociative ionization of small molecules in intense laser fields*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **26**, 783–809, (1993). page 24

- [46] Colao F., Lazic V., Fantoni R. et Pershin S., *A comparison of single and double pulse laser-induced breakdown spectroscopy of aluminum samples*, Spectrochim. Acta B **57**, 1167–1179, (2002). page 17
- [47] Colón C., Hatem G., Vertugo E., Ruiz P. et Campos J., *Measurement of the Stark broadening and shift parameters for several ultraviolet lines of singly ionized aluminum*, J. Appl. Phys. **73**, 4752–4758, (1993). page 142
- [48] Colonna G., Pietanza L. D. et Capitelli M., *Coupled solution of a time-dependent collisional-radiative model and Boltzmann equation for atomic hydrogen plasmas : possible implications with LIBS plasmas*, Spectrochim. Acta B **56**, 587–598, (2001). pages 32, 33 et 37
- [49] Comolet R., *Mécanique expérimentale des fluides. Tome II : Dynamique des fluides réels, turbomachines*, Masson, (1994). page 86
- [50] Cristoforetti G., De Giacomo A., Dell'Aglio M., Legnaioli S., Tognoni E., Palleschi V. et Omenetto N., *Local thermodynamic equilibrium in laser-induced breakdown spectroscopy : beyond the McWhirter criterion*, Spectrochim. Acta B **65**, 86–95, (2010). page 33
- [51] Dalgarno A. et Lane N. F., *Free-free transitions of electrons in gases*, Astrophys. J. **145**, 623–633, (1966). page 60
- [52] De Giacomo A., *Experimental characterization of metallic titanium-laser induced plasma by time and space resolved optical emission spectroscopy*, Spectrochim. Acta B **58**, 71–83, (2003). page 36
- [53] Debras-Guédon J. et Liodec N., *De l'utilisation du faisceau d'un amplificateur à ondes lumineuses par émission induite de rayonnement (laser à rubis), comme source énergétique pour l'excitation des spectres d'émission des éléments*, C.R. Acad. Sci. **257**, 3336–3339, (1963). pages 3 et 10
- [54] Dimitrijević M. S. et Sahal-Bréchot S., *Stark broadening parameter tables for Al I lines of astrophysical interest*, Bull. Astron. Belgrade **146**, 83–95, (1992). page 66
- [55] Dimitrijević M. S. et Sahal-Bréchot S., *Stark broadening of spectral lines of multi-charged ions of astrophysical interest. VII : AL III lines*, Astron. Astrophys. Suppl Ser. **99**, 585–589, (1993). page 66
- [56] Dimitrijević M. S. et Sahal-Bréchot S., *Stark broadening parameter tables for Al III lines*, Bull. Astron. Belgrade **147**, 35–40, (1993). page 66
- [57] Dimitrijević M. S. et Sahal-Bréchot S., *Stark broadening of Al I spectral lines*, Phys. Scripta **49**, 34–38, (1994). page 66
- [58] Diwakar P. K. et Hahn D. W., *Study of early laser-induced plasma dynamics : transient electron density gradients via Thomson scattering and Stark broadening, and the implications on laser-induced breakdown spectroscopy measurements*, Spectrochim. Acta B **63**, 1038–1046, (2008). page 36
- [59] Dmitrieva I. K. et Plindov G. I., *Dipole polarizability of atoms and ions ; correlation with the ionization potential*, J. Appl. Spectrosc. **44**, 4–9, (1986). pages 186 et 187
- [60] Dragoset R. A., Musgrave A., Clark C. W. et Martin W. C., *Periodic Table : Atomic Properties of the Elements (Version 4)*, NIST SP 966., (2003), <http://www.nist.gov/pml/data/periodic.cfm>. page 83
- [61] Drawin H. W., *Collision and transport cross-sections*, DPh-PFC/SRFC **383**, (1966). page 68

- [62] Ehrenreich H., Philipp H. R. et Segall B., *Optical properties of aluminum*, Phys. Rev. **132**, 1918–1928, (1963). page 129
- [63] Eslami H., *A perturbed hard-sphere-chain equation of state for liquid metals*, J. Nucl. Mater. **336**, 135–139, (2005). page 82
- [64] Evans D. E. et Katzenstein J., *Laser light scattering in laboratory plasmas*, Rep. Prog. Phys. **32**, 207–271, (1969). page 178
- [65] Fabre B. L., *Contribution of electron-neutral inverse Bremsstrahlung to laser ionization of gases*, Phys. Lett. **30A**, 167–168, (1969). page 60
- [66] Fajans K. et Joos G., *Molrefraktion von Ionen und Molekülen im Lichte der Atomstruktur*, Z. Physik **23**, 1–46, (1924). pages 186 et 187
- [67] Fauchais P. et Coudert J. F., *Mesures de température dans les plasmas thermiques*, Rev. Gén. Therm. **35**, 324–337, (1996). page 173
- [68] Finke B. R. et Simon G., *On the gas kinetics of laser-induced evaporation of metals*, J. Phys. D : Appl. Phys. **23**, 67–74, (1990). page 19
- [69] Fiocco G. et Thompson E., *Thomson scattering of optical radiation from an electron beam*, Phys. Rev. Lett. **10**, 89–91, (1963). page 173
- [70] Fish L. W. et Lielmezs J., *General method for predicting the latent heat of vaporization*, Ind. Eng. Chem. Fundam. **14**, 248–256, (1975). page 80
- [71] Fishburn J. M., Withford M. J., Coutts D. W. et Piper J. A., *Study of the fluence dependent interplay between laser induced material removal mechanisms in metals : vaporization, melt, displacement and melt ejection*, Appl. Surf. Sci. **252**, 5182–5188, (2006). page 14
- [72] Fourkal E., Bychenkov V. Y., Rozmus W., Sydora R., Kirby C., Capjack C. E., Glenzer S. H. et Baldis H. A., *Electron distribution function in laser heated plasmas*, Phys. Plasmas **8**, 550–556, (2001). page 175
- [73] Fuentealba P., *The static dipole polarizability of aluminium atom : discrepancy between theory and experiment*, Chem. Phys. Lett. **397**, 459–461, (2004). pages 186 et 187
- [74] Fujimoto T. et McWhirter R. W. P., *Validity criteria for local thermodynamic equilibrium in plasma spectroscopy*, Phys. Rev. A **42**, 6588–6601, (1990). page 32
- [75] Gagliano F. P. et Paek U. C., *Observation of laser-induced explosion of solid materials and correlation with theory*, Appl. Optics **13**, 274–279, (1974). page 17
- [76] Galmed A. H. et Harith M. A., *Temporal follow up of the LTE conditions in aluminum laser induced plasma at different laser energies*, Appl. Phys. B **91**, 651–660, (2008). page 33
- [77] Gamal Y. E. E.-D. et Azzouz I. M., *Theoretical analysis of the breakdown of neon induced by 248 nm laser radiation*, J. Phys. D : Appl. Phys. **34**, 3234–3240, (2001). pages 58 et 116
- [78] Gathers G. R., *Thermophysical properties of liquid copper and aluminum*, Int. J. Thermophys **4**, 209–226, (1983). page 81
- [79] Gathers G. R. et Ross M., *Properties of hot expanded liquid aluminum*, J. Non-Cryst. Solids **61-62**, 59–64, (1984). page 81
- [80] George T. V., Engelhardt A. G. et DeMichelis C., *Thomson scattering diagnostics of laser-produced aluminum plasmas*, Appl. Phys. Lett. **16**, 248–251, (1970). page 175

- [81] Ghanty T. K. et Ghosh S. K., *A new simple approach to the polarizability of atoms and ions using frontier orbitals from the Kohn-Sham density functional theory*, J. Mol. Struct. (Theochem) **366**, 139–144, (1996). *pages 186 et 187*
- [82] Glenzer S. H., Alley W. E., Estabrook K. G., De Groot J. S., Haines M. G., Hammer J. H., Jadaud J.-P., MacGowan B. J. and Moody J. D., Rozmus W., Suter L. J., Weiland T. L. et Williams E. A., *Thomson scattering from laser plasmas*, Phys. Plasmas **6**, 2117–2128, (1999). *page 175*
- [83] Glenzer S. H., Rozmus W., MacGowan B. J., Estabrook K. G., De Groot J. S., Zimmerman G. B., Baldis H. A., Harte J. A., Lee R. W., Williams E. A. et Wilson B. G., *Thomson scattering from high-Z laser-produced plasmas*, Phys. Rev. Lett. **82**, 97–100, (1999). *page 175*
- [84] Goehlich A., Schulz-von der Gathen V. et Döbele H. F., *Thomson scattering diagnostics of an argon arc plasma and spectral resolution of the ion feature with a narrow bandwidth dye laser*, Plasmas Phys. Control. Fusion **33**, 29–40, (1991). *page 175*
- [85] Gollisch H., *Dipole polarisabilities of atoms : an  $X_\alpha$  density matrix study*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **17**, 1463–1475, (1984). *pages 186 et 187*
- [86] Goussot G., Ferreira C. M., Pinheiro M., Sá P. A., Touzeau M., Vialle M. et Loureiro J., *Electron and heavy-particle kinetics in the low pressure oxygen positive column*, J. Phys. D : Appl. Phys. **24**, 290–300, (1991). *page 38*
- [87] Grey Morgan C., *Laser-induced breakdown spectroscopy*, Rep. Prog. Phys. **38**, 621–665, (1975). *pages 10, 58 et 116*
- [88] Griem H. R., *Plasma spectroscopy*, McGraw-Hill, (1964). *pages 65, 144, 156, 166, 213, 214, 216 et 217*
- [89] Grimes N. W. et Grimes R. W., *Analysis of oxide dielectric data and the quantum theory of atomic polarizability*, J. Phys. : Condens. Matter **9**, 6737–6747, (1997). *pages 186 et 187*
- [90] Gusarov A. V. et Smurov I., *Gas-dynamic boundary conditions of evaporation and condensation : numerical analysis of the Knudsen layer*, Phys. Fluids **14**, 4242–4255, (2002). *page 20*
- [91] Hafizi B., Sprangle P., Peñano J. R. et Gordon D. F., *Electron distribution in short-pulse photoionization*, Phys. Rev. E **67**, 056407, (2003). *page 25*
- [92] Hamonou L. et Hibbert A., *Static and dynamic polarizabilities of Na-like ions*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **40**, 3555–3568, (2007). *pages 186 et 187*
- [93] Hamonou L. et Hibbert A., *Static and dynamic polarizabilities of Mg-like ions*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **41**, 245004, (2008). *pages 186 et 187*
- [94] Harilal S. S., Bindhu C. V., Tillack M. S., Najmabadi F. et Gaeris A. C., *Internal structure and expansion dynamics of laser ablation plumes into ambient gases*, J. Appl. Phys. **93**, 2380–2388, (2003). *pages 19, 20 et 21*
- [95] Hass G., *Filmed surfaces for reflecting optics*, J. Opt. Soc. Am. **45**, 945–952, (1955). *page 129*
- [96] Hatae T., Nagashima A., Kondoh T., Kitamura S., Kashiwabara T., Yoshida H., Naito O., Shimizu K., Yamashita O. et Sakuma T., *YAG laser Thomson scattering diagnostic on the JT-60U*, Rev. Sci. Instrum. **70**, 772–775, (1999). *page 175*

- [97] Hati S. et Datta D., *Electronegativity and static electric dipole polarizability of atomic species. A semiempirical relation*, J. Phys. Chem. **99**, 10742–10746, (1995). *pages 186 et 187*
- [98] Hawrelak J., Chambers D. M., Glenzer S. H., Gouveia A., Kingham R. J., Marjoribanks R. S., Pinto P. A., Renner O., Soundhauss P., Topping S., Wolfrum E., Young P. E. et Wark J. S., *Thomson scattering measurements of heat flow in a laser-produced plasma*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **37**, 1541–1551, (2004). *page 175*
- [99] Heading D. J., Bennett G. R., Wark J. S. et Lee R. W., *Novel plasma source for dense plasma effects*, Phys. Rev. Lett. **74**, 3616–3619, (1995). *pages 161 et 163*
- [100] Heading D. J., Wark J. S., Lee R. W., Stamm R. et Talin B., *Comparison of the semiclassical and modified semiempirical method of spectral calculation*, Phys. Rev. E **56**, 936–946, (1997). *pages 154, 156 et 162*
- [101] Hermann J., Boulmer-Leborgne C. et Hong D., *Diagnostics of the early phase of an ultraviolet laser induced plasma by spectral line analysis considering self-absorption*, J. Appl. Phys. **83**, 691–696, (1998). *page 36*
- [102] Hermann J., Vivien C., Carricato A. P. et Boulmer-Leborgne C., *A spectroscopic study of laser ablation plasma from Ti, Al and C targets*, Appl. Surf. Sci. **127-129**, 645–649, (1998). *pages 14 et 31*
- [103] Herold H., *Compton and Thomson scattering in strong magnetic fields*, Phys. Rev. D **19**, 2868–2875, (1979). *page 175*
- [104] Heuschkel J. et Kusch H. J., *Stark broadening and shift of singly ionized aluminium lines*, Astron. & Astrophys. **25**, 149–151, (1973). *pages 143, 144 et 152*
- [105] Hibbert A., *Atomic polarisabilities and polarised pseudostates in the multiconfigurational approach. III. Second-row atoms and ions*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **13**, 3725–3731, (1980). *pages 186 et 187*
- [106] Holstein T., *Imprisonment of resonance radiation in gases*, Phys. Rev. **72**, 1212–1233, (1947). *page 65*
- [107] Honig R. E. et Woolston J. R., *Laser-induced emission of electrons, ions and neutral atoms from solid surfaces*, Appl. Phys. Lett. **2**, 138–139, (1963). *page 11*
- [108] Hori T., Kogano M., Bowden M. D., Uchino K. et Muraoka K., *A study of electron energy distributions in an inductively coupled plasma by laser Thomson scattering*, J. Appl. Phys. **83**, 1909–1916, (1998). *page 175*
- [109] Hüttner B., *Optical properties of polyvalent metals in the solid and liquid state : aluminum*, J. Phys. : Condens. Matter **6**, 2459–2474, (1994). *page 129*
- [110] Hughes J. W., Mossessian D. A., Hubbard A. E., Marmar E. S., Johnson D. et Simon D., *High-resolution edge Thomson scattering measurements on the Alcator C-Mod tokamak*, Rev. Sci. Instrum. **72**, 1107–1110, (2001). *page 175*
- [111] Iida T. et Guthrie R. I. L., *The physical Properties of liquid metals*, Clarendon Press, (1988). *page 80*
- [112] Issac R. C., Varier G. K., Gopinath P., Harilal S. S., Nampoori V. P. N. et Vallabhan C. P. G., *Prompt electron emission and collisional ionization of ambient gas during pulsed laser ablation of silver*, Appl. Phys. A **67**, 557–561, (1998). *page 16*

- [113] Ivanov V., Proshina O., Rakhimova T. et Rakhimov A., *Comparison of a one-dimensional particle-in-cell-Monte Carlo model and a one-dimensional fluid model for a CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub> capacitively coupled radio frequency discharge*, J. Appl. Phys. **91**, 6296–6302, (2002). page 38
- [114] Jablonski A., Salvat F. et Powell C. J., *Comparison of electron elastic-scattering cross sections calculated from two commonly used atomic potentials*, J. Phys. Chem. Ref. Data **33**, 409–451, (2004). page 71
- [115] Jauernik P., Kempkens H. et Uhlenbusch J., *Simultaneous detection of Rayleigh and Thomson scattering signals from a hollow cathode arc plasma*, Plasmas Phys. Control. Fusion **29**, 1615–1630, (1987). page 175
- [116] Kaganov M. I., Lifshitz I. M. et Tanatarov L. V., *Relaxation between electrons and the crystalline lattice*, Sov. Phys.-JETP **4**, 173–178, (1957). page 42
- [117] Kapper M. G., *A high-order transport scheme for collisional-radiative and nonequilibrium plasma*, Thèse de doctorat, The Ohio State University, (2009). page 62
- [118] Kaptay G., *A unified model for the cohesive enthalpy, critical temperature, surface tension and volume thermal expansion coefficient of liquid metals of bcc, fcc and hcp crystals*, Mater. Sci. Eng. A **495**, 19–26, (2008). page 81
- [119] Kaptay G., *Corrigendum to "A unified model for the cohesive enthalpy, critical temperature, surface tension and volume thermal expansion coefficient of liquid metals of bcc, fcc and hcp crystals" [Mater Sci Eng A 495 (2008) 19–26]*, Mater. Sci. Eng. A **501**, 255, (2009). page 81
- [120] Keldysh L. V., *Ionization in the field of a strong electromagnetic wave*, Sov. Phys.-JETP **20**, 1307–1314, (1965). page 25
- [121] Kelly R. et Miotello A., *Comments on explosive mechanisms of laser sputtering*, Appl. Surf. Sci. **96-98**, 205–215, (1996). page 17
- [122] Kelly R. et Miotello A., *On the role of thermal processes in sputtering and composition changes due to ions or laser pulses*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **141**, 49–60, (1998). page 17
- [123] Kempkens H. et Uhlenbusch J., *Scattering diagnostics of low-temperature plasmas (Rayleigh scattering, Thomson scattering, CARS)*, Plasma Sources Sci. Technol. **9**, 492–506, (2000). page 177
- [124] Kito Y., Sakuta T. et Kamiya A., *Thomson scattering of laser light from a high pressure air arc discharge and its application to electron density measurement*, J. Phys. D : Appl. Phys. **17**, 2283–2290, (1984). page 175
- [125] Kittel C., *Physique de l'état solide*, Dunod, (1998). page 23
- [126] Kondratjev D. A., Beigman I. L. et Vainshtein L. A., *Static polarizabilities of helium and alkali atoms, and their isoelectronic ions*, J. Russ. Laser Res. **31**, 294–306, (2010). pages 186 et 187
- [127] Konjević N., Dimitrijević M. S. et Wiese W. L., *Experimental stark widths and shifts for spectral lines of neutral atoms (A critical review of selected data for the period 1976 to 1982)*, J. Phys. Chem. Ref. Data **13**, 619–647, (1984). pages 66 et 213
- [128] Konjević N., Dimitrijević M. S. et Wiese W. L., *Experimental stark widths and shifts for spectral lines of positive ions (A critical review and tabulation of selected data for the period 1976 to 1982)*, J. Phys. Chem. Ref. Data **13**, 649–686, (1984). page 66

- [129] Konjević N., Lesage A., Fuhr J. R. et Wiese W. L., *Experimental stark widths and shifts for spectral lines of neutral and ionized atoms (A critical review of selected data for the period 1989 to 2000)*, J. Phys. Chem. Ref. Data **31**, 819–927, (2002).  
page 66
- [130] Kono A. et Funahashi H., *Thomson-scattering observation of non-Maxwellian electron energy distribution in inductively coupled  $C_4F_8/Ar$  and  $CF_4/Ar$  plasmas and the effect of vibrational excitation and nonlocal electron kinetics*, J. Appl. Phys. **92**, 1757–1763, (2002).  
page 175
- [131] Kono A. et Nakatani K., *Efficient multichannel Thomson scattering measurement system for diagnostics of low-temperature plasmas*, Rev. Sci. Instrum. **71**, 2716–2721, (2000).  
page 175
- [132] Koo J. C., *Laser-induced explosion of solid material*, J. Appl. Phys. **48**, 618–620, (1977).  
page 18
- [133] Kramers H. A., *On the theory of X-ray absorption and of the continuous X-ray spectrum*, Phil. Mag. **46**, 836–871, (1923).  
page 60
- [134] Krishnan S. et Nordine P. C., *Optical properties of liquid aluminum in the energy range 1.2-3.5 eV*, Phys. Rev. B **47**, 11780–11787, (1993).  
page 129
- [135] Lagrange J. F., *Etude spectroscopique et imagerie rapide d'une plume d'ablation laser obtenue à partir dde cibles céramiques d'oxydes complexes ( $CaCu_3Ti_4O_{12}$  et  $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ )*, Thèse de doctorat, Université François Rabelais de Tours - Laboratoire d'Electrodynamique des Matériaux Avancés UMR CNRS CEA 6157, (2010).  
page 19
- [136] Le Drogoff B., Vidal F., von Kaenel Y., Chaker M., Johnston T. W., Laville S., Sabsabi M. et Margot J., *Ablation of aluminum thin films by ultrashort laser pulses*, J. Appl. Phys. **89**, 8247–8252, (2001).  
page 41
- [137] Letfullin R. R., Joenathan C., George T. F. et Zharov V. P., *Laser-induced explosion of gold nanoparticles : potential role for nanophotothermolysis of cancer*, Nanomedicine **1**, 473–480, (2006).  
page 22
- [138] Lide D. R. (éditeur), *Handbook of Chemistry and Physics, 90th Edition*, CRC Press, (2009).  
page 85
- [139] Lim H., Jang D., Kim D., Lee J. W. et Lee J. M., *Correlation between particle removal and shock-wave dynamics in the laser shock cleaning process*, J. Appl. Phys. **97**, 054903, (2005).  
page 22
- [140] Lim H. et Kim D., *Optical diagnostics for particle-cleaning process utilizing laser-induced shockwave*, Appl. Phys. A **79**, 965–968, (2004).  
page 22
- [141] Liu H. C., Mao X. L., Yoo J. H. et Russo R. E., *Early phase laser induced plasma diagnostics and mass removal during single-pulse laser ablation of silicon*, Spectrochim. Acta B **54**, 1607–1624, (1990).  
pages 15 et 36
- [142] Lochte-Holtgreven W. (éditeur), *Resonance-enhanced LIBS*, North-Holland publishing compagny, (1968).  
page 62
- [143] Lompre L. A., Mainfray G., Manus C., Repoux S. et Thebault J., *Multiphoton ionization of rare gases at very high laser intensity ( $10^{15} \text{ W cm}^{-2}$ ) by a 30-psec laser pulse at  $1.06 \mu\text{m}$* , Phys. Rev. Lett. **36**, 949–952, (1976).  
page 26
- [144] Lorazo P., Lewis L. J. et Meunier M., *Short-pulse laser ablation of solids : from phase explosion to fragmentation*, Phys. Rev. Lett. **91**, 225502, (2003).  
pages 18 et 43

- [145] Lu Q., *Thermodynamic evolution of phase explosion during high-power nanosecond laser ablation*, Phys. Rev. E **67**, 016410, (2003). page 18
- [146] Lu Q., Mao S. S., Mao X. et Russo R. E., *Delayed phase explosion during high-power nanosecond laser ablation*, Appl. Phys. Lett. **80**, 3072–3074, (2002). page 15
- [147] Lu Q., Mao S. S., Mao X. et Russo R. E., *Theory analysis of wavelength dependence of laser-induced phase explosion of silicon*, J. Appl. Phys. **104**, 083301, (2008). page 17
- [148] Lu Y. F., Hong M. H. et Low T. S., *Laser plasma interaction at an early stage of laser ablation*, J. Appl. Phys. **85**, 2899–2903, (1999). page 36
- [149] Lunney J. G. et Jordan R., *Pulsed laser ablation of metals*, Appl. Surf. Sci. **127-129**, 941–946, (1998). page 30
- [150] MacLeod A. J., *The efficient computation of some generalised exponential integrals*, J. Comput. Appl. Math. **148**, 363–374, (2002). page 68
- [151] Margetic V., Ban T., Leis F., Niemax K. et Hergenröder R., *Hydrodynamic expansion of a femtosecond laser produced plasma*, Spectrochim. Acta B **58**, 415–425, (2003). page 45
- [152] Margetic V., Bolshov M., Stockhaus A., Niemax K. et Hegenröder R., *Depth profiling of multi-layer samples using femtosecond laser ablation*, J. Anal. At. Spectrom. **16**, 616–621, (2001). page 41
- [153] Maurmann S., Kadetov V. A., Khalil A. A. I., Kunze H. J. et Czarnetzki U., *Thomson scattering in low temperature helium plasma of a magnetic multipole plasma source*, J. Phys. D : Appl. Phys. **37**, 2677–2685, (2004). page 175
- [154] Mazhukin V. I., Nossov V. V., Nickiforov M. G. et Smurov I., *Optical breakdown in aluminum vapor induced by ultraviolet laser radiation*, J. Appl. Phys. **93**, 56–66, (2003). pages 14, 30, 33 et 36
- [155] Mazhukin V. I., Nossov V. V., Smurov I. et Flamant G., *Modelling of radiation transfer in low temperature nanosecond laser-induced plasma of Al vapour*, J. Phys. D : Appl. Phys. **37**, 185–199, (2004). page 60
- [156] Médard L., *L'oeuvre scientifique de Paul Vieille (1854-1934)*, Revue d'histoire des sciences **47**, 381–404, (1994). page 10
- [157] Mele A., Giardini Guidoni A., Kelly R., Flaminii C. et Orlando S., *Laser ablation of metals : analysis of surface-heating and plume-expansion experiments*, Appl. Surf. Sci. **109-110**, 584–590, (1997). page 19
- [158] Menschutkin B. N., *Vasiliy Vladimirovich Petrov and his physico-chemical work*, ISIS **25**, 391–398, (1936). page 10
- [159] Menzel D. H. et Pekeris C. L., *Absorption coefficients and hydrogen line intensities*, Mon. Not. R. Astron. Soc. **96**, 77–111, (1935). page 167
- [160] Milani P., Moullet I. et de Heer W. A., *Experimental and theoretical electric dipole polarizabilities of Al and Al<sub>2</sub>*, Phys. Rev. A **42**, 5150–5154, (1990). pages 186 et 187
- [161] Miles R. B., Lempert W. R. et Forkey J. N., *Laser Rayleigh scattering*, Meas. Sci. Technol. **12**, R33–R51, (2001). page 185
- [162] Miotello A. et Kelly R., *Laser-induced phase explosion : new physical problems when a condensed phase approaches the thermodynamic critical temperature*, Appl. Phys. A **69**, S67–S73, (1999). page 16

- [163] Mitroy J., Zhang J. Y., Bromley M. W. J. et Rollin K. G., *Blackbody radiation shift of the Al<sup>+</sup> clock transition*, Eur. Phys. J. D **53**, 15–19, (2009). pages 186 et 187
- [164] Miziolek A. W., Palleschi V. et Schechter I. (éditeurs), *Laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS) Fundamentals and applications*, ch. 1. History and fundamentals of LIBS, Cambridge University Press, (2006). page 11
- [165] Molina J. M., Voytovych R. et Louis E. Eustathopoulos N., *The surface tension of liquid aluminium in high vacuum : The role of surface condition*, Int. J. Adhes. Adhes. **27**, 394–401, (2007). page 81
- [166] Morel V., Bultel A. et Chéron B. G., *The critical temperature of aluminum*, Int. J. Thermophys **30**, 1853–1863, (2009). pages 80, 84, 221, 226 et 230
- [167] Morel V., Bultel A. et Chéron B. G., *Modeling of thermal and chemical non-equilibrium in a laser induced aluminum plasma by means of a collisional-radiative model*, Spectrochim. Acta B **65**, 830–841, (2010). page 39
- [168] Mott-Smith H. M., *History of "plasmas"*, Nature **233**, 219, (1971). page 10
- [169] Mousazadeh M. H. et Ghanadi Marageh M., *A perturbed Lennard-Jones chain equation of state for liquid metals*, J. Phys. : Condens. Matter **18**, 4793–4800, (2006). page 82
- [170] Müsing A., Riedel U., Warnatz J., Herden W. et Ridderbusch H., *Laser-induced breakdown in air and behind droplets : A detailed Monte-Carlo simulation*, Proc. Comb. Inst. **31**, 3007–3014, (2007). page 58
- [171] Muraoka K., Uchino K. et Bowden M. D., *Diagnostics of low-density glow discharge plasmas using Thomson scattering*, Plasmas Phys. Control. Fusion **40**, 1221–1239, (1998). page 175
- [172] Murmann H., Götsch S., Röhr H., Salzmann H. et Steuer K. H., *The Thomson scattering systems of the ASDEX upgrade tokamak*, Rev. Sci. Instrum. **63**, 4941–4943, (1992). page 175
- [173] Nagpal R. et Ghosh P. K., *Electron energy distribution functions and vibrational electronic states in DC discharges through nitrogen*, J. Phys. D : Appl. Phys. **23**, 1663–1670, (1990). page 38
- [174] Niedrig R. et Bostanjoglo O., *Imaging and modeling of pulse laser induced evaporation of metal films*, J. Appl. Phys. **81**, 480–485, (1997). page 15
- [175] Noguchi Y., Matsuoka A., Uchino K. et Muraoka K., *Direct measurement of electron density and temperature distributions in a micro-discharge plasma for a plasma display panel*, J. Appl. Phys. **91**, 613–616, (2002). page 175
- [176] Noll R., Bette H., Brysch A., Kraushaar M., Mönch I., Peter L. et Sturm V., *Laser-induced breakdown spectrometry - applications for production control and quality assurance in the steel industry*, Spectrochim. Acta B **56**, 637–649, (2001). page 11
- [177] Okamoto A., Kado S., Kajita S. et Tanaka S., *Laser Thomson scattering system applicable to low-temperature plasma in the divertor simulator MAP-II*, Rev. Sci. Instrum. **76**, 116106, (2005). page 175
- [178] Pakhal H. R., Lucht R. P. et Laurendeau N. M., *Spectral measurements of incipient plasma temperature and electron number density during laser ablation of aluminum in air*, Appl. Phys. B **90**, 15–27, (2008). pages 62 et 63
- [179] Pan X., Shneider M. N. et Miles R. B., *Coherent Rayleigh-Brillouin scattering*, Phys. Rev. Lett. **89**, 183001, (2002). page 186

- [180] Pauleau Y. (éditeur), *Materials surface processing by directed energy techniques*, ch. Laser beam-solid interactions : fundamental aspects, Elsevier, (2006).  
pages 16 et 79
- [181] Pauling L., *The theoretical prediction of the physical properties of many-electron atoms and ions. Mole refraction, diamagnetic susceptibility and extension in space*, Proc. Roy. Soc. A **114**, 181–211, (1927).  
pages 186 et 187
- [182] Perry M. D., Landen O. L., Szöke A. et Campbell E. M., *Multiphoton ionization of the noble gases by an intense  $10^{14}$ -W/cm<sup>2</sup> dye laser*, Phys. Rev. A **37**, 747–760, (1988).  
pages 26 et 27
- [183] Petkovšek R., Možina J. et Močnik G., *Optodynamic characterization of the shock waves after laser-induced breakdown in water*, Optics Express **13**, 4107–4112, (2005).  
page 22
- [184] Petzoldt S., Reif J. et Matthias E., *Laser plasma threshold of metals*, Appl. Surf. Sci. **96-98**, 199–204, (1996).  
page 14
- [185] Piehler T. N., DeLucia Jr. F. C., Munson C. A., Homan B. E., Mizolek A. W. et McNesby K. L., *Temporal evolution of the laser-induced breakdown spectroscopy spectrum of aluminum metal in different bath gases*, Appl. Optics **44**, 3654–3660, (2005).  
pages 21 et 31
- [186] Pietanza L. D., Colonna G., De Giacomo A. et Capitelli M., *Kinetic processes for laser induced plasma diagnostic : a collisional-radiative model approach*, Spectrochim. Acta B **65**, 616–626, (2010).  
pages 32, 33, 35 et 37
- [187] Porneala C. et Willis D. A., *Observation of nanosecond laser-induced phase explosion in aluminum*, Appl. Phys. Lett. **89**, 211121, (2006).  
pages 15, 16, 17 et 18
- [188] Povarnitsyn M. E., Itina T. E., Khishchenko K. V. et Levashov P. R., *Suppression of ablation in femtosecond double-pulse experiments*, Phys. Rev. Lett. **103**, 195002, (2009).  
page 41
- [189] Radziemski L. J. et Cremers D. A. (éditeurs), *Laser-induced plasmas and applications*, ch. Physics of laser-induced breakdown : an update, Marcel Dekker Inc., (1989).  
page 28
- [190] Radziemski L. J., Loree T. R., Cremers D. A. et Hoffman N. L., *Time-resolved laser-induced breakdown spectrometry of aerosols*, Anal. Chem **55**, 1246–1252, (1983).  
page 11
- [191] Rajesh R., Ramesh Kumar B., Varshney S. K., Kumar M., Chavda C., Thakkar A., Patel N. C., Kumar A. et Team A., *Electron temperature ( $T_e$ ) measurements by Thomson scattering system*, Pramana - J. Phys. **55**, 733–740, (2000).  
page 175
- [192] Rakić A. D., Djurisic A. B., Elazar J. M. et Majewski M. L., *Optical properties of metallic films for vertical-cavity optoelectronic devices*, Appl. Optics **37**, 5271–5283, (1998).  
page 129
- [193] Ready J. F., *Development of plume of material vaporized by giant-pulse laser*, Appl. Phys. Lett. **3**, 11–13, (1963).  
page 11
- [194] Reid R. C., *Superheated liquids*, Am. Sci. **64**, 146–156, (1976).  
page 17
- [195] Reshetnikov N., Curtis L. J., Brown M. S. et Irving R. E., *Determination of polarizabilities and lifetimes for the Mg, Zn, Cd and Hg isoelectronic sequences*, Phys. Scripta **77**, 015301, (2008).  
pages 186 et 187

- [196] Rosen D. I., Hastings D. E. et Weyl G. M., *Coupling of pulsed 0.35- $\mu\text{m}$  laser radiation to titanium alloys*, J. Appl. Phys. **53**, 5882–5890, (1982). pages 30, 32, 36 et 60
- [197] Rosen D. I., Mitteldorf J., Kothandaraman G., Pirri A. N. et Pugh E. R., *Coupling of pulsed 0.35- $\mu\text{m}$  laser radiation to aluminum alloys*, J. Appl. Phys. **53**, 3190–3200, (1982). pages 30, 32, 33, 35 et 36
- [198] Rosen D. I. et Weyl G., *Laser-induced breakdown in nitrogen and the rare gases at 0.53 and 0.35  $\mu\text{m}$* , J. Phys. D : Appl. Phys. **20**, 1264–1276, (1987). page 60
- [199] Rosenband T., Itano W. M., Schmidt P. O., Hume D. B., Koelemeij J. C. J., Bergquist J. C. et Wineland D. J., *Blackbody radiation shift of the  $^{27}\text{Al}^+ \ ^1S_0 \rightarrow \ ^3P_0$  transition*, arXiv, 0611125v2, (2006). pages 186 et 187
- [200] Rusak D. A., Castle B. C., Smith B. W. et Winefordner J. D., *Recent trends and the future of laser-induced plasma spectroscopy*, Trends Anal. Chem. **17**, 453–461, (1998). page 11
- [201] Russo R. E., Mao X., Gonzalez J. J. et Mao S. S., *Femtosecond laser ablation ICP-MS*, J. Anal. At. Spectrom. **17**, 1072–1075, (2002). page 41
- [202] Ryabikh Y. I. et Fabrikant I. I., *Partial-wave analysis of low-energy electron scattering by aluminium atoms*, J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. **14**, 349–356, (1981). page 71
- [203] Sallé B., *Étude de l'interaction laser-matériau appliquée à l'analyse élémentaire des solides*, Thèse de doctorat, Université d'Orléans - Laboratoire de Spectroscopie Laser Analytique CEA-Saclay, (1999). page 41
- [204] Salpeter E. E., *Electron density fluctuations in a plasma*, Phys. Rev. **120**, 1528–1535, (1960). page 179
- [205] Schaffer C. B., Brodeur A. et Mazur E., *Laser-induced breakdown and damage in bulk transparent materials induced by tightly focused femtosecond laser pulses*, Meas. Sci. Technol. **12**, 1784–1794, (2001). page 24
- [206] Schmidt P. C., Weiss A. et Das T. P., *Effect of crystal fields and self-consistency on dipole and quadrupole polarizabilities of closed-shell ions*, Phys. Rev. B **19**, 5525–5534, (1979). pages 186 et 187
- [207] Schroeder C. B., Esarey E. et Leemans W. P., *Electron-beam conditioning by Thomson scattering*, Phys. Rev. Lett. **93**, 194801, (2004). page 175
- [208] Schulz L. G., *The optical constants of silver, gold, copper, and aluminum. I. The absorption coefficient k*, J. Opt. Soc. Am. **44**, 357–362, (1954). page 129
- [209] Seasholtz R. G., Buggele A. E. et Reeder M. F., *Flow measurements based on Rayleigh scattering and Fabry-Perot interferometer*, Opt. Laser Eng. **27**, 543–570, (1997). pages 180 et 187
- [210] Seaton M., *The theory of excitation and ionization by electron impact*, New York : Academic, (1962). page 29
- [211] Shannon M. A., Mao X. L., Fernandez A. Chan W.-T. et Russo R. E., *Laser ablation mass removal versus incident power density during solid sampling for inductively coupled plasma atomic emission spectroscopy*, Anal. Chem. **67**, 4522–4529, (1995). page 19
- [212] Sibold D. et Urbassek H. M., *Monte Carlo study of Knudsen layers in evaporation from elemental and binary media*, Phys. Fluids **5**, 243–256, (1993). page 19

- [213] Singh J. P. et Thakur S. N. (éditeurs), *Laser-induced breakdown spectroscopy*, ch. 3. Laser ablation, Elsevier, (2007). page 60
- [214] Singh R. K., Bhattacharya D. et Narayan J., *Subsurface heating effects during pulsed laser evaporation of materials*, Appl. Phys. Lett. **57**, 2022–2024, (1990). page 16
- [215] Singh R. K. et J. N., *Pulsed-laser evaporation technique for deposition of thin films : Physics and theoretical model*, Phys. Rev. B **41**, 8843–8861, (1990). page 60
- [216] Sirven J. B., Bousquet B., Canioni L. et Sarger L., *Time-resolved and time-integrated single-shot laser-induced plasma experiments using nanosecond and femtosecond laser pulses*, Spectrochim. Acta B **59**, 1033–1039, (2004). page 41
- [217] Snyder S. C. et Bentley R. E., *A measurement of axial velocity and temperature in a free-burning arc using Thomson scattering*, J. Phys. D : Appl. Phys. **29**, 3045–3049, (1996). page 175
- [218] Snyder S. C., Reynolds L. D., Lassahn G. D., Fincke J. R. et Shaw Jr. C. B., *Determination of gas-temperature and velocity profiles in an argon thermal-plasma jet by laser-light scattering*, Phys. Rev. E **47**, 1996–2005, (1993). page 175
- [219] Spitzer L. J., *Physics of fully ionized gases*, Interscience Publishers, Inc. New York, (1956). page 37
- [220] Sutherland R. S., *Accurate free-free Gaunt factors for astrophysical plasmas*, Mon. Not. R. Astron. Soc. **300**, 321–330, (1998). page 165
- [221] Tao Y., Tillack M. S., Harilal S. S., Sequoia K. L., O'Shay B. et Najmabadi F., *Effect of shockwave-induced density jump on laser plasma interactions in low-pressure ambient air*, J. Phys. D : Appl. Phys. **39**, 4027–4030, (2006). pages 22 et 161
- [222] Taylor R. L. et Caledonia G., *Experimental determination of the cross-sections for neutral Bremsstrahlung I. Ne Ar and Xe*, J. Quant. Spectrosc. Ra. **9**, 657–679, (1969). page 64
- [223] Taylor R. L. et Caledonia G., *Experimental determination of the cross-sections for neutral Bremsstrahlung II. High temperature air species O, N and N<sub>2</sub>*, J. Quant. Spectrosc. Ra. **9**, 681–696, (1969). page 64
- [224] Thareja R. K., Abhilasha et Dwivedi R. K., *Optical emission spectroscopy of laser-produced carbon plasma at moderate and low irradiance in an ambient atmosphere*, Laser Part. Beams **13**, 481–492, (1995). page 22
- [225] Thomann A. L., Boulmer-Leborgne C. et Dubreuil B., *A contribution to the understanding of the plasma ignition mechanism above a metal target under UV laser irradiation*, Plasma Sources Sci. Technol. **6**, 298–306, (1997). pages 14, 30, 36, 60 et 61
- [226] Tognoni E., Cristoforetti G., Legnaioli S. et Palleschi V., *Calibration-free laser-induced breakdown spectroscopy : state of the art*, Spectrochim. Acta B **65**, 1–14, (2010). page 33
- [227] Touloukian Y. S. et Ho C. Y., *TPRC Report 21 "Properties of aluminum and aluminim allors"*, Rapport technique, Thermophysical Properties Reaserach Center, (1973). pages 83, 84, 221, 226 et 230
- [228] Tracy M. D., De Groot J. S., Estabrook K. G. et Cameron S. M., *Detailed 266 nm Thomson scattering measurements of a laser-heated plasma*, Phys. Fluids B **4**, 1576–1584, (1992). page 175

- [229] Travailé G., Peyrusse O., Bousquet B., Canioni L., Michel-Le Pierres K. et Roy S., *Local thermodynamic equilibrium and related metrological issues involving collisional-radiative model in laser-induced aluminum plasmas*, Spectrochim. Acta B **64**, 931–937, (2009). *pages 32, 33 et 37*
- [230] Tucker W. H. et Gould R. J., *Radiation from a low-density plasma at  $10^6$  ° -  $10^8$  ° K*, Astrophys. J. **144**, 244–258, (1966). *pages 62 et 164*
- [231] Uchino K., Kubo Y., Muraoka K., Sadoka T., Yamakoshi H., Kato M., Takahashi A. et Maeda M., *Investigation of electron density and velocity distribution in high-pressure discharges for excimer laser pumping using laser Thomson scattering*, J. Appl. Phys. **70**, 41–45, (1991). *page 175*
- [232] Upadhyay A. K., Inogamov N. A., Rethfeld B. et Urbassek H. M., *Ablation by ultrashort laser pulses : atomistic and thermodynamic analysis of the processes at the ablation threshold*, Phys. Rev. B **78**, 045437, (2008). *page 43*
- [233] <http://cea.grc.nasa.gov/>. *pages 83, 221, 226 et 230*
- [234] [http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/levels\\_form.html](http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/levels_form.html). *page 50*
- [235] [http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines\\_form.html](http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/lines_form.html). *page 64*
- [236] [http://stark-b.obspm.fr/index.php/stark\\_b/quervpage/data?targetId=3](http://stark-b.obspm.fr/index.php/stark_b/quervpage/data?targetId=3). *pages 213, 214 et 219*
- [237] <http://www.cfa.harvard.edu/amp/ampdata/kurucz23/sekur.html>. *page 64*
- [238] <http://www.pa.uky.edu/~peter/atomic/>. *page 64*
- [239] van de Sande M. J., Deckers R. H. M., Lepkojus F., Buscher W. et van der Mullen J. J. A. M., *Time resolved electron density and temperature measurements on a capacitively coupled helium RF discharge*, Plasma Sources Sci. Technol. **11**, 466–475, (2002). *page 175*
- [240] van de Sande M. J. et van der Mullen J. J. A. M., *Thomson scattering on a low-pressure, inductively-coupled gas discharge lamp*, J. Phys. D : Appl. Phys. **35**, 1381–1391, (2002). *page 175*
- [241] van Dijk J., Kroesen G. M. W. et Bogaerts A., *Plasma modelling and numerical simulation*, J. Phys. D : Appl. Phys. **42**, 190301, (2009). *page 10*
- [242] Vargel C., *Propriétés générales de l'aluminium et de ses alliages*, Techniques de l'ingénieur **M4661**, 1–16, (2005). *page 83*
- [243] Venugopalan M. (éditeur), *Reactions under plasma conditions*, Wiley Interscience, (1971). *page 63*
- [244] Vidal C., Dewel G. et Borckmans P., *Au-delà de l'équilibre*, Hermann, (1994). *page 53*
- [245] Warner K. et Hieftje G. M., *Thomson scattering from analytical plasmas*, Spectrochim. Acta B **57**, 201–241, (2002). *page 178*
- [246] Wellershoff S. S., Hohlfeld J., Gündde J. et Matthias E., *The role of electron-phonon coupling in femtosecond laser damage of metals*, Appl. Phys. A **69**, S99–S107, (1999). *pages 42, 43 et 44*
- [247] Weyl G. M. et Rosen D., *Laser-induced breakdown in argon at  $0.35\ \mu\text{m}$  : Theory and experiments*, Phys. Rev. A **31**, 2300–2313, (1985). *pages 19, 30, 32, 36 et 60*

- [248] Wilbers A. T. M., Kroesen G. M. W., Timmermans C. J. et Schram D. C., *The continuum emission of an arc plasma*, J. Quant. Spectrosc. Ra. **45**, 1–10, (1991).  
pages 62 et 63
- [249] Yarmolich D., Vekselman V., Gleizer J. Z., Hadas Y., Felsteiner J. et Krasik Y. E., *Thomson scattering diagnostics of the plasma generated in a hollow anode with a ferroelectric plasma source*, Appl. Phys. Lett. **90**, 011502, (2007). page 175
- [250] Yoo J. H., Borisov O. V., Mao X. L. et Russo R. E., *Existence of phase explosion during laser ablation and its effect on inductively coupled plasma-mass spectroscopy*, Anal. Chem **73**, 2288–2293, (2001). page 17
- [251] Yoo J. H., Jeong S. H., Mao X. L., Greif R. et Russo R. E., *Evidence for phase-explosion and generation of large particles during high power nanosecond laser ablation of silicon*, Appl. Phys. Lett. **76**, 783–785, (2000). page 17
- [252] Yu Q. Z., Zhang J., Li Y. T., Lu X., Hawrelak J., Wark J., Chambers D. M., Wang Z. B., Yu C. X., Jiang X. H., Li W. H., Liu S. Y. et Zheng Z. J., *Thomson scattering measurements of heat flux from ion-acoustic waves in laser-produced aluminum plasmas*, Phys. Rev. E **71**, 046407, (2005). page 175
- [253] Yu Q. Z., Zhang J., Li Y. T., Zheng J., Yan F., Lu X., Wang Z. B., Zheng J., Yu C. X., Jiang X. H., Li W. H., Liu S. Y. et Zheng Z. J., *Thomson scattering process in laser-produced plasmas*, Chin. Phys. Lett. **22**, 1717–1720, (2005). page 175
- [254] Yui H., Yoneda Y., Kitamori T. et Sawada T., *Spectroscopic analysis of stimulated Raman scattering in the early stage of laser-induced breakdown in water*, Phys. Rev. Lett. **82**, 4110–4113, (1999). page 36
- [255] Zehe M. J., Gordon S. et McBride B. J., *CAP : A computer code for generating tabular thermodynamic functions from NASA Lewis coefficients*, Rapport technique, Glenn Research Center - NASA/TP - 2001-210959/REV1, (2002). page 83
- [256] Zel'dovich Y. B. et Raizer Y. P., *Physics of shock waves and high-temperature hydrodynamic phenomena*, Dover publication Inc., (2002). pages 60, 61 et 62
- [257] Zhigilei L. V. et Garrison B. J., *Molecular dynamics simulation study of the fluence dependence of particle yield and plume composition in laser desorption and ablation of organic solids*, Appl. Phys. Lett. **74**, 1341–1343, (1999). page 18
- [258] Zhu X., Redwitz M., Kieft E. R., van de Sande M. J. et van der Mullen J. J. A. M., *Thomson scattering measurements on an atmospheric Ar dc discharge lamp*, J. Phys. D : Appl. Phys. **37**, 736–743, (2004). page 175



## Résumé :

L'interaction entre une impulsion laser nanoseconde et un échantillon à des densités de flux de l'ordre de  $10^{13} \text{ W m}^{-2}$  conduit à la création puis la relaxation d'un plasma par l'intermédiaire de phénomènes élémentaires collisionnels et radiatifs. L'analyse spectrale de ce plasma en recombinaison peut permettre la caractérisation de l'échantillon et constitue le principe de base de la LIBS (Laser Induced Breakdown Spectroscopy). Cette caractérisation est en général délicate en raison de la persistance de déséquilibres thermique ou d'excitation au sein du plasma résultant du fort déséquilibre thermodynamique initial où l'impulsion interagit avec l'échantillon. Le but de ces travaux a été de modéliser la dynamique de l'interaction laser-échantillon dans les conditions précédentes afin d'étudier ces déséquilibres partiels, leur conditions d'obtention et leur relaxation. Le cas retenu pour cette étude correspond à un échantillon d'aluminium placé dans le vide et éclairé par une impulsion de longueur d'onde 532 nm et de 4 ns de durée à mi-hauteur. Le plasma étant en déséquilibre thermodynamique, les temps caractéristiques concernés s'étendent sur l'intervalle  $10^{-10} \text{ s} - 10^{-6} \text{ s}$ . Un modèle collisionnel-radiatif (CR) est mis au point en prenant en compte l'excitation et l'ionisation par impact électronique, l'ionisation multiphotonique, le Bremsstrahlung inverse, le Bremsstrahlung thermique, l'émission spontanée et les collisions élastiques. Ce modèle CR est couplé à l'échantillon selon deux approches : l'évolution de la température de surface est imposée (modèle A) ou cette évolution résulte en partie de la résolution de l'équation de bilan de l'énergie au sein de l'échantillon (modèle B). Les résultats mis en évidence montrent une évolution très rapide des densités de population au sein du plasma qui dépend très fortement du niveau atteint par la température de surface. L'ionisation multiphotonique, le Bremsstrahlung inverse et la densité de flux d'atomes en provenance de l'échantillon sont les phénomènes prépondérants dans la création du plasma et conduisent à une densité et une température électroniques maximales respectivement égales à  $4.10^{24} \text{ m}^{-3}$  et 7000 K. Afin de valider le modèle CR, des expériences sont menées dans les conditions de l'approche théorique précédente. L'émission du fond continu émis aux temps courts est attribué au Bremsstrahlung thermique à la recombinaison radiative : son analyse ainsi que celle des raies de  $\text{Al}^+$  à 466 nm et autour de 700 nm permet d'estimer la densité et la température électroniques respectivement à  $10^{25} \text{ m}^{-3}$  et 15000 K. Les différences avec les résultats du modèle CR sont analysées.

Mots clés : plasma, laser, LIPS, LIBS, modèle collisionnel-radiatif, aluminium, cinétique chimique détaillée, spectroscopie d'émission, Bremsstrahlung, ionisation multiphotonique

## Abstract :

A sample can be analysed by using laser impact : matter is ejected in part and the resulting gas is rapidly heated up to become a highly radiating plasma. The related lines can be analysed by emission spectroscopy and they provide information about the target composition : the derived diagnostic method is called LIBS (Laser Induced Breakdown Spectroscopy). Previous works have shown that the fluence  $F$  and the pulse duration  $\tau$  are the predominant parameters. The model developed during this PhD is performed in the aim of describing the plasma formation in compliance with the physical situation. A 1D numerical approach including a Collisional-Radiative model is elaborated in the purpose of describing the behaviour of the nascent plasma resulting from the interaction between a Nd :YAG laser pulse ( $F = 6.5 \text{ J cm}^{-2}$  and  $\tau = 4 \text{ ns}$ ) with an aluminium sample in vacuum. The species considered are  $\text{Al}$ ,  $\text{Al}^+$ ,  $\text{Al}^{2+}$ , and  $\text{Al}^{3+}$ , on their different excited states and free electrons. Both groups of particles are characterized by their translation temperature in thermal non-equilibrium state. Besides, each population density is assumed to be in chemical non-equilibrium and behaves freely through the five involved elementary processes (electron induced excitation and ionisation, elastic collisions, multi-photon ionisation and inverse Bremsstrahlung). Atoms passing from the sample to the gas phase are described by using classical vaporization phenomena so that the surface temperature is limited to values less than the critical point. The results put forward the rapid evolution of population densities which strongly depend on the temperature value reached at the sample surface. The model shows that processes as multi-photon ionisation, inverse Bremsstrahlung and the atom flux density coming from the surface are preponderant for the plasma formation and lead to a maximum value of electron density and temperature equal to  $4.10^{24} \text{ m}^{-3}$  and 7000 K respectively. In order to validate the collisional-radiative model, experiments are performed in conditions as similar as possible to those of the theoretical approach. The emission of the continuum radiation emitted at early time is ascribed to the thermal Bremsstrahlung and the radiative recombination. The analysis of the continuum radiation and the emission of  $\text{Al}^+$  spectral lines at 466 nm and 700 nm allows the estimate of the electron density at temperature respectively at  $10^{25} \text{ m}^{-3}$  and 15000 K. The discrepancies with the results of the modeling are analysed.

Keywords : plasma, laser, LIPS, LIBS, collisional-radiative model, aluminium, detailed chemical kinetics, emission spectroscopy, Bremsstrahlung, multi-photon ionisation