

## INFLUENCE DE LA PRESSION SUR L'EXPANSION D'UN PLASMA PRODUIT PAR UN LASER PULSÉ NANOSECONDE

S. AGGOUNE et E.H. AMARA

*Équipe : Traitement des Matériaux par Laser, Centre de Développement des Technologies Avancées,  
B.P. 17, Baba-Hassen, 16303 Alger, Algérie*

E-mail : [saggoune@cdda.dz](mailto:saggoune@cdda.dz)

**RÉSUMÉ :** Ce travail porte sur l'étude numérique de la phase d'expansion et d'extinction d'un plasma d'aluminium, créé par ablation laser nanoseconde dans une ambiance d'air prise à deux séries différentes de pressions : (150 mtorr, 300 mtorr, 600 mtorr) et (1,3 Torr, 3 Torr, 10 Torr).

La résolution des équations de Navier-Stokes montre que la dynamique de l'expansion du plasma se fait en trois phases : une phase d'expansion forte des particules ablatées comme si celles-ci évoluaient dans le vide, viennent ensuite les phases de freinage et d'arrêt caractérisées par les deux modèles : onde de choc et viscosité. Le travail présenté consiste en l'étude de l'influence de la variation de la pression sur la taille et la température de la plume. Nos résultats ont été vérifiés et ils concordent bien avec ceux obtenus expérimentalement.

**MOTS-CLÉS :** ablation, laser, plasma, expansion, aluminium

### 1. Introduction:

L'interaction du panache d'un plasma produit par laser pulsé sous une ambiance gazeuse est un processus très compliqué qui inclut : la décélération, l'atténuation et la thermalisation des particules ablatées, la formation des ondes de choc, le découplage du plasma et la formation de molécules. Sa modélisation a fait l'objet de plusieurs études notamment par J. R. Ho, C. P. Grigoropoulos et J. A. C. Humphrey [1], qui ont étudié le dépôt de couches minces par lasers (ns, excimer) pulsés à fluences variables appliqué à des cibles d'aluminium, de cuivre et d'or. Leur recherche montre qu'initialement, l'écoulement de la vapeur est unidimensionnel puis au bout d'un certain temps apparaît une recirculation et une expansion radiale, rendant l'écoulement bidimensionnel.

Une autre étude décrivant l'ablation laser nanoseconde d'une cible de cuivre a été faite par A. Bogaerts et Z. Chen [2]. L'expansion du panache se réalise dans un gaz ambiant d'hélium porté à 1 atm. Le processus d'expansion est résolu en utilisant les équations de conservation de Navier Stokes qui prennent en compte l'effet du gaz ambiant. Ces auteurs confirment que l'augmentation de la pression provoque plusieurs collisions, et que la vitesse d'expansion du panache ionisé se trouve supérieure à celle d'un plasma non ionisé.

D'autres auteurs, tels que Leborgne et al [3], ont mis en évidence l'expansion du plasma d'ablation laser, laquelle dépend essentiellement de la fluence, de la taille de la tache focale, de la pression et de la nature du gaz dans l'enceinte. Ils montrent que l'onde de choc produite résulte d'un dépôt d'énergie instantané dans un volume infinitésimal et d'une compression du milieu ambiant provoquée par l'éjection de particules à partir de la surface irradiée. Leur étude a montré aussi qu'expérimenté dans le vide, le panache plasma se propage linéairement avec des vitesses constantes et de l'ordre de  $10^6$  cm/s.

Par contre, dans une ambiance gazeuse, le panache se comporte différemment, la différence est liée à la durée de vie du plasma qui est plus longue dans le gaz relativement à celle du vide. Ceci montre bien l'existence d'une interaction entre matière vaporisée et gaz ambiant.

L'effet de la pression du gaz d'azote puis d'oxygène sur l'expansion d'un plasma de titane a fait l'objet d'une étude par C. Dutouquet et J. Hermann [4], ceux-ci ont montré le confinement de la plume et la croissance de sa température avec la pression à la fin du pulse laser et pour des pressions de (1.3, 7, 13 et 70 Pa).

L'expansion du plasma en présence d'un gaz se traduit par l'existence de trois régimes successifs [5-7]

:

- i) une expansion libre des particules éjectées semblable à celle qui se produit sous vide mais qui ne dure que quelques centaines de nanosecondes.
- ii) une expansion d'une onde de choc
- iii) une expansion limitée par des forces de viscosité.

Le travail que nous présentons étudie l'influence de la pression sur le comportement d'un plasma d'aluminium sur sa taille et sa température, en résolvant numériquement les équations de Navier-Stokes et en utilisant le logiciel Fluent.

## 2. Modélisation:

Le processus de l'ablation laser s'effectue au moyen de différents modèles, chacun correspondant à une phase du processus.

a) Phase d'expansion durant l'interaction de la lumière laser avec la cible et le plasma dont la durée se résout à quelques nanosecondes, elle persiste jusqu'à la fin du pulse.

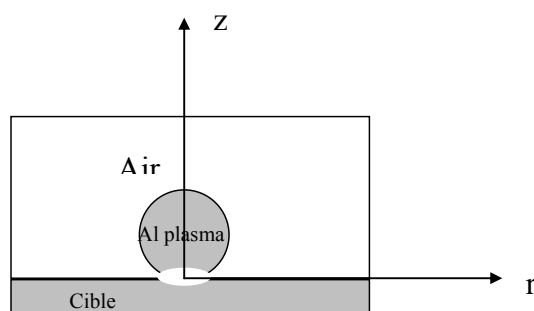
b) Phase d'expansion sans l'irradiation laser, donc sans apport d'énergie, celle-ci peut être divisée en deux étapes :

1- L'étape de l'expansion et thermalisation menant à l'équilibre thermodynamique local mais avec une diffusion négligeable du gaz ambiant dans le plasma métallique (elle dure quelques dizaines de **nanosecondes**).

2- L'étape de l'expansion et mélange avec le gaz ambiant où les phénomènes de la diffusion et de la convection jouent un rôle dominant (celle-ci dure quelques dizaines de **microsecondes**)

Nous avons développé une simulation numérique de cette seconde phase basée sur un modèle hydrodynamique utilisant les équations de Navier-Stokes.

Vu le caractère de l'expansion, nous considérons une symétrie cylindrique ( $r, z$ ). La figure (1) illustre le système de coordonnées utilisé dans notre simulation.



**Fig. 1** Domaine de calcul

Dans notre modélisation nous avons supposé que :

a) Le plasma est à l'équilibre thermodynamique local (ETL) à chaque pas de temps: L'ETL du plasma est justifié par la haute densité existante ( $\sim 10^{24} \text{ cm}^{-3}$ ).

- b) Le BI (Bremsstrahlung inverse) n'existe plus, l'ionisation cesse ainsi que l'éjection de matière, donc il n'y a aucun terme source dans les équations après la fin du pulse laser (aucun apport de masse ni d'énergie).
- c) La géométrie initiale du plasma choisie est presque une sphère en 3d et donc un cercle en 2d, de 3mm de rayon et est situé à une distance de 4cm du substrat [8,9].
- d) L'écoulement est considéré bidimensionnel ( $r, z$ : coordonnées cylindriques) et in stationnaire.
- e) Les deux diffusions thermique et massique sont prises en compte.
- f) Notre point initial dans le temps est la fin du pulse.

Après l'impulsion du pulse laser, les équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie du mélange des espèces chimiques (aluminium et air) s'écrivent comme suit:

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div}(\rho \mathbf{V}) &= 0 \quad (S = 0) \\
 \frac{\partial(\rho \mathbf{V})}{\partial t} + \text{div}(\rho \mathbf{V} \mathbf{V}) &= -\text{div}(\boldsymbol{\tau}) \\
 \frac{\partial(\rho H)}{\partial t} + \text{div}(\rho \mathbf{V} H) &= \text{div} \left[ \frac{K}{C_p} \text{grad}(H) \right] \\
 \frac{\partial(\rho w_{Al})}{\partial t} + \text{div}(\rho \mathbf{V} w_{Al}) &= \text{div} \left[ \rho D_{Al}^m \text{grad}(w_{Al}) + D_{Al}^T \text{grad}(\ln T) \right]
 \end{aligned} \tag{1}$$

Dans ces équations,  $\rho$  étant la densité massique totale du milieu,  $\mathbf{v}$  la vitesse et  $S$  le terme source ;  $\boldsymbol{\tau}$  dans la seconde équation représente le tenseur de quantité de mouvement.  $C_p, K$  et  $H$  sont respectivement, la chaleur massique à pression constante, la conductivité thermique et l'enthalpie.

Nous avons considéré un maillage uniforme de 250 000 mailles et un pas de temps de :  $10^{-8}$ s. Les conditions initiales de la plume d'aluminium sont :  $w_{Al}=1$ ,  $\mathbf{v}_i = \left(\frac{2}{\gamma-1}\right) \mathbf{v}_s = 11771 \text{m/s}$  et  $T_i = 30000 \text{K}$ . Celles de l'air sont :  $w_{Al}=0$ ,  $P_a = 0.001 \text{atm}$  et  $T_a = 300 \text{K}$ . Les conditions aux limites sont :  $(\partial T / \partial z) = 0$ ,  $w_{Al} = 0$  (la cible restante est entourée d'air),  $\mathbf{V} = 0$  (condition de glissement) au niveau de la cible restante. Au niveau des parois fictives:  $(\partial T / \partial z) = (\partial T / \partial r) = 0$ ,  $w_{Al} = 0$ ,  $P_a = 1.3 \text{ Torr} = 0.0017 \text{atm}$  [Cette condition signifie que nous sommes loin de la plume d'aluminium].

### 3. Résultats et discussion:

#### 3.1 Dynamique de l'expansion de la plume en présence d'air porté à une pression de 1.3 Torr:

Pour étudier le comportement de la plume en présence d'air, nous avons tracé la distance atteinte par le front du panache au-dessus de la cible en fonction du temps  $t$  pour les deux séries de pressions choisies, voir figures 2 et 3.

Pour mieux comprendre la dynamique de la plume, nous avons fixé la pression à 1.3 Torr. Aux premiers instants de l'expansion, le graphe de la distance en fonction du temps est linéaire, la vitesse est la pente de la courbe tracée. Elle est estimée à  $10^7 \text{mm/s} = 10^4 \text{m/s}$  qui est de l'ordre de la vitesse d'expansion dans le vide.

Le plasma continue à se propager, la différence de pression entre le front de celui-ci et l'air qui l'entoure donne naissance à une onde de choc. L'onde de choc ainsi formée à environ 300ns se propage selon la relation  $R(t) \sim t^{0.38}$  qui n'est pas loin de celle qui régit le modèle d'onde de choc sphérique.

En effet, quand la masse de la vapeur éjectée est petite comparée à celle de l'air, un front d'onde sphérique se forme et sa propagation est donnée par :  $Z = \gamma (E_0/\rho_0)^{1/5} t^{0.4}$

A 1 $\mu$ s environ, les pressions d'air et de la plume s'égalisent, les particules du gaz se diffusent à l'intérieur de la plume qui devient thermalisée. Cette phase du mouvement qui connaît un ralentissement suivi d'un arrêt est régie par le modèle de viscosité.

En effet, nous avons vérifié que le modèle de viscosité dont nous rappelons la relation  $R(t) = R_0 (1 - \exp(-\beta t))$ , où  $R_0$  est la distance d'arrêt de la plume et  $\beta$  le coefficient de frottement ( $R_0 \beta = v_0$ ) est en bon accord avec nos points numériques. Ce modèle prévoit effectivement que la plume va connaître un arrêt. Les paramètres du fit sont:  $\beta = 0.002(\text{ns})^{-1}$  et  $R_0 = 16.5\text{mm}$ , ces valeurs coïncident avec celles des travaux expérimentaux sous référenciés [8, 9].

La figure 8 illustre la taille de la plume pour différents instants. Initialement, la plume a la forme d'une sphère, donc le front de celle-ci est circulaire en 2d. En avançant dans le temps, ce front devient pointu (forme conique), cela est dû au fait que les plus forts gradients sont dans la direction normale à la cible et donc la plus grande énergie cinétique des particules est émise perpendiculairement à la surface de celle ci. Cet effet disparaît avec le confinement de la plume par le gaz ambiant.

Nous observons aussi que l'air ne pénètre pas dans le cœur de la plume, il reste localisé à sa périphérie.

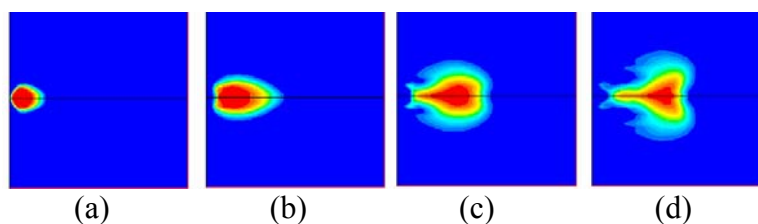


Fig. 4 Contours de la fraction massique d'aluminium aux instants : 0.04  $\mu$ s, 0.5  $\mu$ s, 1  $\mu$ s et 5  $\mu$ s.

### 3.2 Influence de la pression de l'air:

#### 3.2.1. Sur la taille de la plume :

En général, la dynamique d'expansion du plasma en présence d'un gaz ambiant se fait en trois phases: linéaire, courbée puis aplatie.

Le panache plasma se détache tout d'abord de la cible avec une expansion libre des particules ablatées comme si celles-ci évoluaient dans le vide: Partie linéaire, dans ce cas l'expansion est forte.

A partir de quelques dizaines variant à quelques centaines de nanosecondes selon la pression cette vapeur éjectée agit par la suite comme un piston sur le gaz, ce qui crée une onde de choc qui se propage à l'interface vapeur-gaz: L'expansion devient lente.

Finalement aux environs de la microseconde, lorsque la pression à l'intérieur du panache plasma diminue et atteint celle de l'air, l'onde de choc disparaît et l'air commence alors à freiner le plasma jusqu'à le stopper: Freinage puis arrêt.

C'est ce que montre la première série de courbes (pressions modérées), voir figure 2.

Concernant la deuxième série de pressions (faibles pressions), le modèle de viscosité n'a pas encore apparu à 10 $\mu$ s, nous observons uniquement le modèle d'onde de choc, voir figure 3.

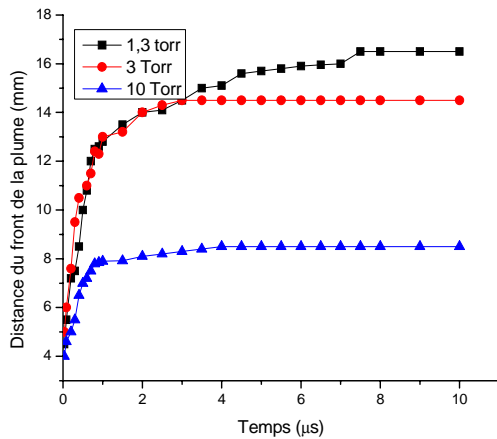


Fig. 2 distance du front de la plume en fonction du temps pour les pressions : 1.3, 3 et 10 Torr

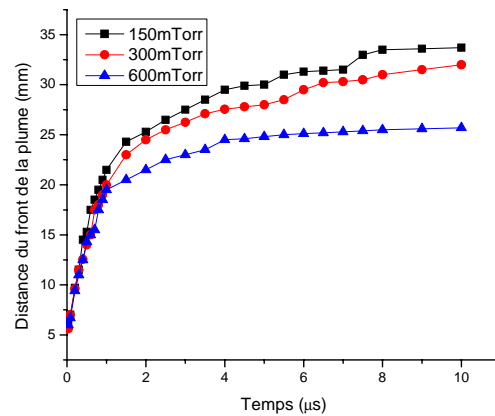


Fig. 3 distance du front de la plume en fonction du temps pour les pressions : 150, 300 et 600 mTorr

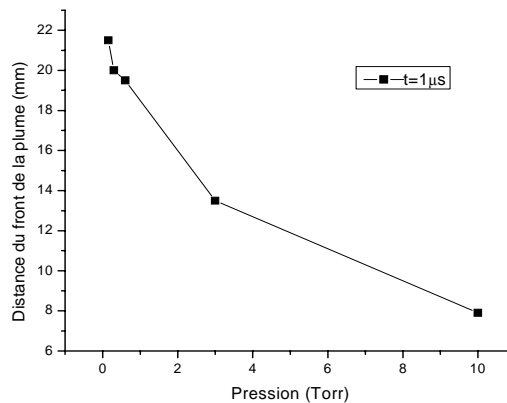


Fig. 5 Variation de la distance du front de la plume.

En fixant le temps à 1 µs, la longueur L du plasma est inversement proportionnelle à la pression ( $L \propto P^{-0.16}$ ), la figure 5 illustre bien le confinement de la plume.

### 3.2.2 Sur les profils de températures:

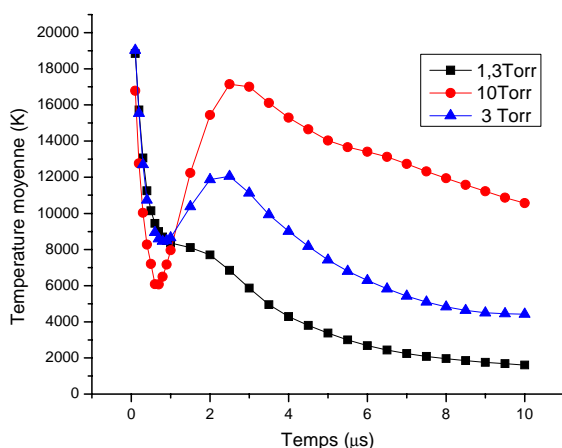
Après l'impulsion laser, le plasma passe dans une phase de recombinaison, l'énergie thermique est rapidement convertie en énergie cinétique. La baisse de température observée dans les deux séries de pressions est due essentiellement au fait que le pulse laser se soit subitement arrêté. L'expansion du plasma ainsi que le travail des forces de pression qui poussent l'air ambiant contribuent aussi au refroidissement de la plume-plasma.

Dans le cas de la première série de pression nous remarquons que la baisse de température est interrompue brusquement par l'onde de choc qui lui fait subir un pic entraînant un réchauffement.

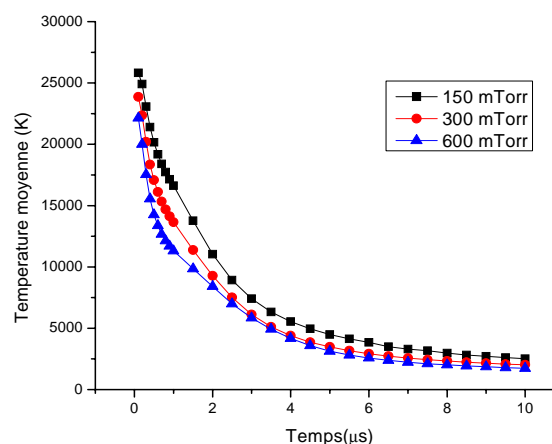
Pour cette gamme de pressions et avant l'apparition de l'onde de choc, les espèces éjectées se trouvant sur le front du plasma se propagent dans un milieu froid et stationnaire (air porté à 300K). Par conséquent, la température du front plasma baisse alors que la température des particules d'air augmente. Durant cette phase, les collisions avec les particules d'air sont

négligeables. Ce front devient de plus en plus épais et froid lorsque nous augmentons la pression, il s'ensuit une baisse de la température moyenne de la plume formée, voir figure 6. Cela est aussi valable pour la deuxième série de pressions où il n'y a pas apparition du modèle de viscosité (150, 300, 600mTorr), voir figure 7. Les auteurs A. K. Sharma, R. K. Thareja [10], confirment expérimentalement ce résultat.

Tout en restant dans la première série, passé l'apparition de l'onde de choc, nous avons une interpénétration des particules du gaz avec celles du plasma. L'augmentation de la pression provoque plusieurs collisions qui elles rendent le libre parcours moyen de plus en plus petit. Le plasma devient donc plus chaud, ce qui augmente sa température moyenne, voir figure 6. Dans ce cas, la variation de la température en fonction du temps donne les expressions respectives suivantes:  $T=18134.7 t^{-1.06}$ ,  $T=26521.9 t^{-0.80}$  et  $T=25870.3 t^{-0.38}$  pour les pressions de 1.3, 3 et 10 Torr.



**Fig. 6** Température moyenne du plasma en fonction du temps pour les pressions : 1.3, 3 et 10 Torr



**Fig. 7** Température moyenne du plasma en fonction du temps pour les pressions : 150, 300 et 600 mtorr

#### 4. Conclusion:

L'intérêt de l'utilisation du logiciel Fluent nous permet de résoudre certains problèmes liés aux plasmas, notamment l'expansion d'un plasma produit par ablation laser sous une ambiance d'air portée à différentes pressions. Certains résultats expérimentaux viennent d'être vérifiés : Nous avons utilisé deux séries de pression, l'une modérée et l'autre faible.

La première montre qu'avec l'augmentation de la pression, la température moyenne du plasma diminue avant l'apparition de l'onde de choc, nous rencontrons ce même phénomène dans la deuxième série où il y a absence de la phase caractérisant le modèle de viscosité.

Pour des pressions modérées et après la disparition de l'onde de choc, nous observons le phénomène inverse, l'augmentation de pression induit l'augmentation de température moyenne. Nous avons aussi remarqué le confinement de la plume avec l'élévation de la pression de l'air.

Nos résultats rejoignent en effet ceux fournis par les travaux expérimentaux [8,9, 10].

#### Références

- [1] J. R. Ho, C. P. Grigoropoulos et J. A. C. Humphrey, *J. Appl. Phys.* **79**, 7205-7215, (1996)
- [2] Annemie Bogaerts, Zhaoyang Chen et Davide Bleiner, **21**, 384–395, *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, (2006)

- [3] A. Basillais, C. Boulmer Leborgne, J. Mathias, N. Laidani, A. Laurent, J. Perriere, Appl. Phys. A, **71**, 619-925, (2000).
- [4] C. Dutouquet, J. Hermann, Laser induced fluorescence probing during pulsed-laser ablation for three-dimensional number density mapping of plasma species, J. Phys.D: Appl. Phys, **34**, 3356-3363, (2001)
- [5] A Gomes, A Aubreton, J J Gonzalez and S Vacqui'e, J. Appl. Phys. D, **37**, 689-696, (2004)
- [6] A. Bogaerts and Z. Chen, Spectrochimica acta, Part B **60**, pp, 1280-1307, (2005)
- [7] Sy-Bor Wen, Xianglei Mao, Chunyi Liu, Ralph Greif and Richard Russo, Journal of physics, **59**, 343–347, (2007)
- [8] S. S. Harilal , C.V. Bidhu, M.S. Tillack, F. Nadjmabadi and A. C. Gaeris, J. Appl. Phys. **93**, 2380(2003).
- [9] S. S. Harilal , C.V. Bidhu, M.S. Tillack, F. Nadjmabadi and A. C. Gaeris, J. Phys. D: Appl. Phys, **35**, 2935(2002).
- [10] A. K. Sharma, R. K. Thareja, Plume dynamics of laser produced aluminium plasma in ambient nitrogen, Appl. Surf. Scien, **243**, 68-75 (2005)