



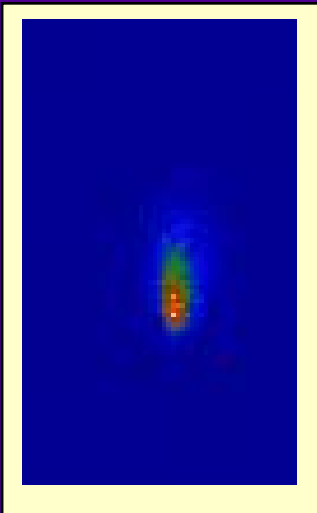
# MODELISATION DES PLASMAS PRODUITS PAR INTERACTION LASER - MATIERE

*Tatiana ITINA, LP3 CNRS, Marseille*

**Ablation  
LASER=>**

- Création d'un panache plasma

*Pour: analyse de la surface (LIBS), dépôt, formation d'agrégats et/ou molécules, X, traitement des surfaces...*

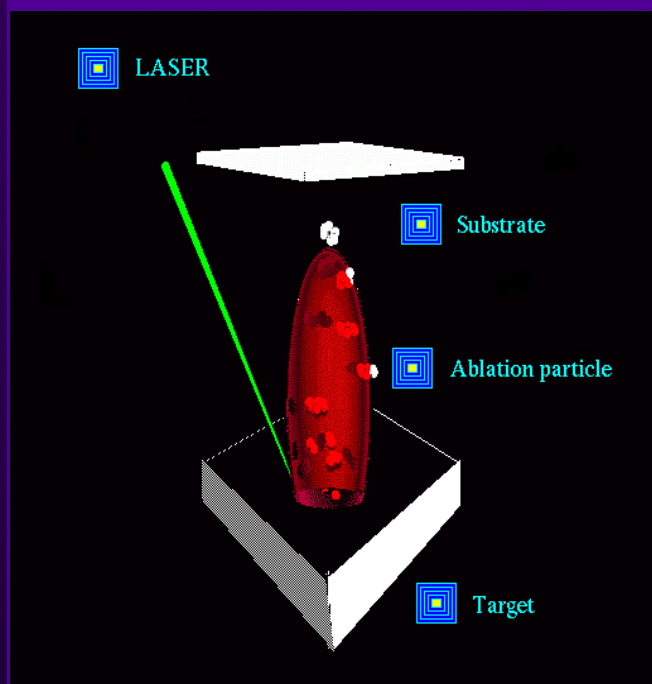


Particularités des plasmas laser :

- Plasma est assez dense au début
- Equilibre thermodynamique (LTE) ?
- Température et densité diminuent avec le temps
- Modélisation: approches hydro et micro



## *Interactions laser-matière et l'expansion d'un plasma créé*



- Absorption du rayonnement par cible et/ou plasma
- Création d'un milieu avec T et P élevées
- Propagation d'ondes de pression et thermique
- Transitions de phases et décomposition du matériau
- Ionisation
- Éjection d'électrons, d'ions et de particules neutres
- Formation d'un panache d'ablation
- Expansion d'un panache (plume)
- Collisions et réactions chimiques
- Formation de nano-agrégats
- Émission (=>LIBS)
- Plus ...

➡ *Les processus sont non-uniformes, non-stationnaires et très rapides*



## Laser Nanoseconde : Source thermique

Absorption dans la cible

$$I = (1 - R)I_0 \exp(-\mu z)$$

$$\delta_a = \frac{1}{\mu}$$

(loi Beer-Lambert)

$$c(T)\rho(T)\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( K(z, T) \frac{\partial T}{\partial z} \right) + \mu I(z, t)$$

Chauffage, évaporation, transition des phases

$$\rho \Delta H_m(T_{tr})v_{\text{int}} = K_{\text{sol}} \left. \frac{\partial T}{\partial z} \right|_{z^+_{\text{int}}} - K_{\text{liq}} \left. \frac{\partial T}{\partial z} \right|_{z^-_{\text{int}}}$$

Diffusion de la chaleur

$$\delta_T = 2\sqrt{\chi\tau}$$

Couche de Knudsen

$$\frac{P_K}{P_S} = \left( \frac{T_K}{T_S} \right)^{1/2} \left[ \left( s^2 + \frac{1}{2} \right) \text{erfc}(s) \exp(s^2) - \frac{s}{\sqrt{\pi}} \right] + \frac{1}{2} \left[ 1 - \sqrt{\pi} \text{erfc}(s) \exp(s^2) \right]$$

$$\left( \frac{T_K}{T_S} \right)^{1/2} = \left( 1 + \frac{\pi s^2}{64} \right)^{1/2} - \frac{\sqrt{\pi}}{8} s$$

$$s = \frac{U_K}{(2kT_K/m)^{1/2}}$$



# Hydrodynamique 2D

## Modèle 2T 1 fluide

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div}(\rho \mathbf{W}) = 0$$

$$\frac{\partial \rho U}{\partial t} + \text{div}(\rho U \mathbf{W}) + \frac{\partial P}{\partial x} = 0$$

$$\frac{\partial \rho V}{\partial t} + \text{div}(\rho V \mathbf{W}) + \frac{\partial P}{\partial y} = 0$$

$$\frac{\partial \rho E_a}{\partial t} + \text{div}(\rho E_a \mathbf{W}) + \text{div}(P_a \mathbf{W}) = Q$$

$$\frac{\partial \rho E}{\partial t} + \text{div}(\rho E \mathbf{W}) + \text{div}(P \mathbf{W}) = L - F$$

$$E = \varepsilon_a + \varepsilon_e + |\mathbf{W}|^2 / 2$$

$$E_a = \varepsilon_a + |\mathbf{W}|^2 / 2$$

$$P = P_a + P_e$$

$$P_a = (\gamma - 1) \rho \varepsilon_a$$

$$P_e = (\gamma - 1) \rho_e \varepsilon_e$$

$$Q = Q_{ei} + Q_{ea}$$

## Méthode de solution: Particules Grandes

### Les processus sont découplés

-Euler hydro-dynamic stage  
(finite-difference operator  $D_E$ ),

-Lagrange hydro-dynamic stage  
(finite-difference operator  $D_L$ ),

-Final hydro-dynamic stage  
(finite-difference operator  $D_F$ ),

-Electron-ion and electron-atom energy exchange  
(finite-difference operator  $D_Q$ )

-Setting of boundary conditions  
(finite-difference operator  $D_B$ )

$$D = D_E \cdot D_L \cdot D_F \cdot D_Q \cdot D_B$$



## Processus dans un plasma créé par laser nanoseconde

- Absorption: Bremsstrahlung inverse (*radiation libre-libre d'une charge dans le champ Coulombien d'une seconde charge*)
- Émission de radiation (hypothèse de LTE)
- Ionisation (e-atomes et photo-ionisation)
- Recombinaison
  - Recombinaison à trois corps
  - Recombinaison radiative
- Réactions chimiques
- Condensation



## Absorption

Coefficient d'absorption ( $\text{cm}^{-1}$ ):

$$\alpha_{\nu} = 4 \cdot 10^{-8} \frac{Z^2}{\sqrt{T}} n_e n_i \left(1 - e^{\frac{-h\nu}{kT}}\right) g(\nu, T)$$

Comportements asymptotiques:

→  $\alpha_{\nu} \propto n_e n_i g T^{-1/2} \nu^{-3}$  pour  $h\nu \gg kT$

→  $\alpha_{\nu} \propto n_e n_i g T^{-3/2} \nu^{-2}$  pour  $h\nu \ll kT$

$$g(\nu, T) = \sqrt{3/\pi} \ln(\Lambda)$$

Plus la longueur d'onde est **longue**, plus l'absorption par plasma est **fort** =>  
plus **haute température** => plus **forte émission de la radiation** (amplitude)



## Modèle combiné Hydro - Monte Carlo (LP-DSMC)

$t < t_0$  Hydrodynamique 2D (LP)

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div}(\rho \mathbf{W}) = 0$$

$$\frac{\partial \rho U}{\partial t} + \text{div}(\rho U \mathbf{W}) + \frac{\partial P}{\partial z} = 0$$

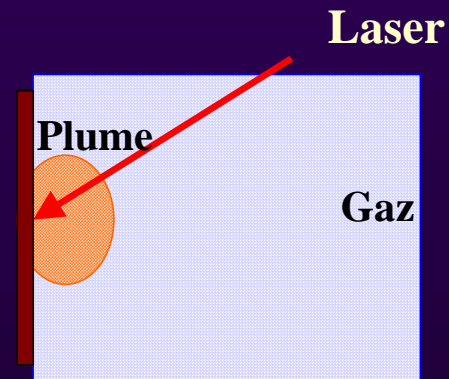
$$\frac{\partial \rho V}{\partial t} + \text{div}(\rho V \mathbf{W}) + \frac{\partial P}{\partial r} = 0$$

$$\frac{\partial \rho E_a}{\partial t} + \text{div}(\rho E_a \mathbf{W}) + \text{div}(P_a \mathbf{W}) = Q_{ei} + Q_{ea}$$

$$\frac{\partial \rho E}{\partial t} + \text{div}(\rho E \mathbf{W}) + \text{div}(P \mathbf{W}) = -F$$

$$\rho(r, z, t), E(r, z, t), V(r, z, t), U(r, z, t)$$

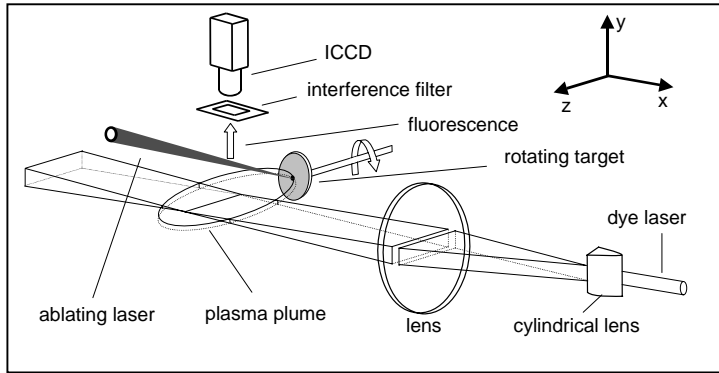
$t > t_0$  Direct Simulation Monte Carlo (DSMC)



-ensemble de particules

-petites cellules ( $l < \lambda$ )

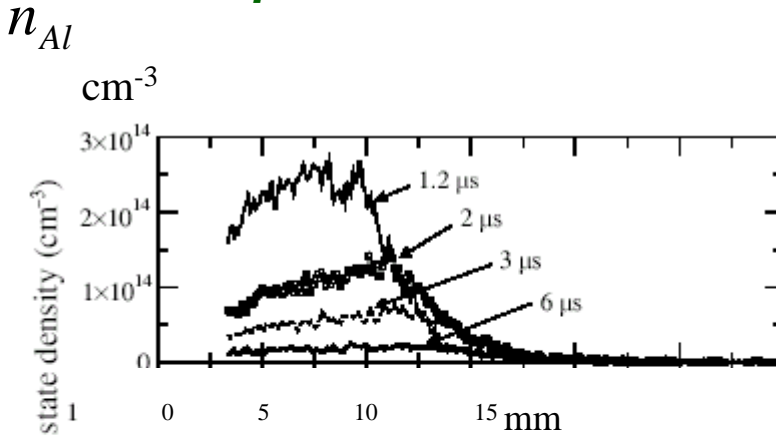
# Régime nanoseconde



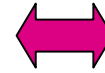
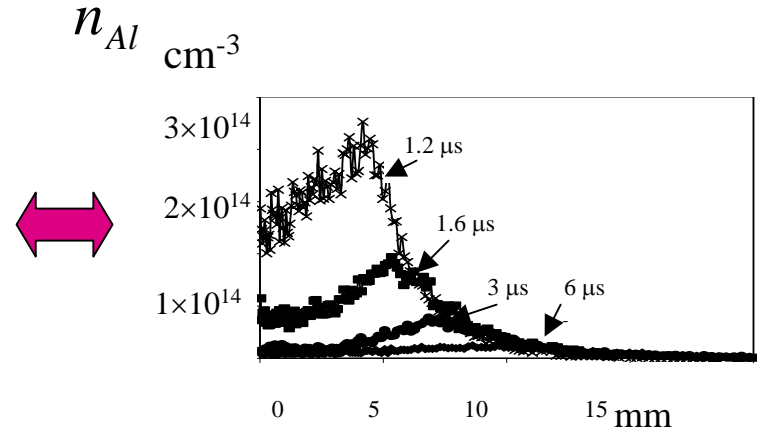
## Densité

Al in O<sub>2</sub>

### Expérience LIF



### calculs LP-DSMC



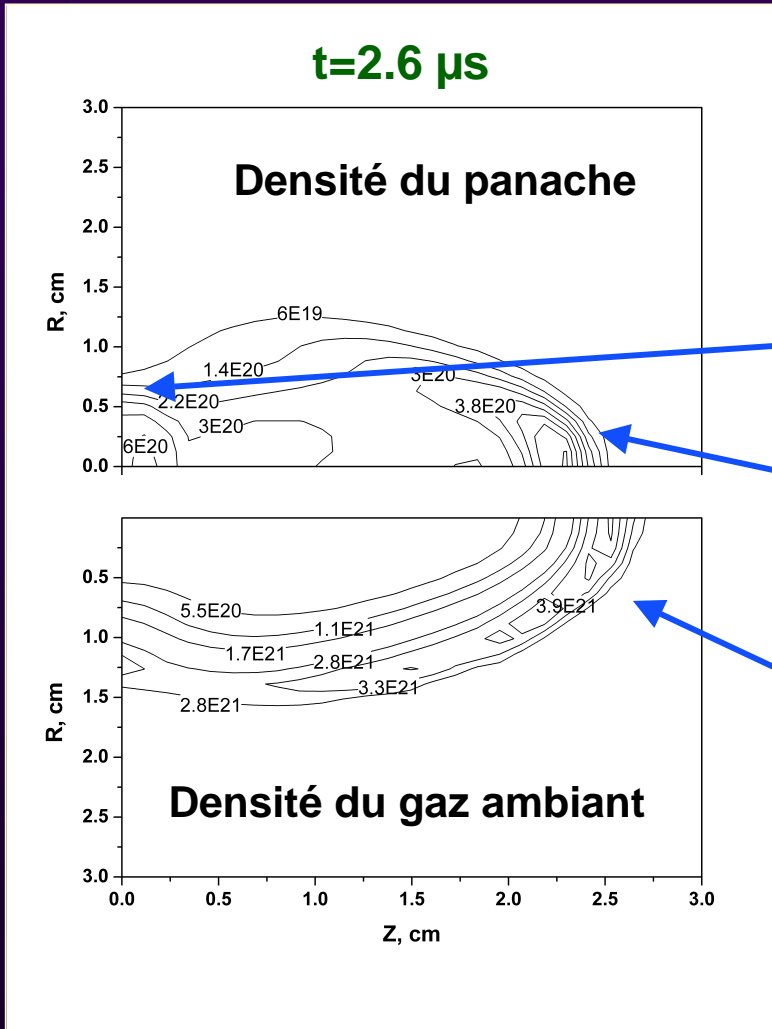
C. Dutouquet and J. Hermann, *J. Phys. D:*

*Appl. Phys.* 34, (2001)

modèle



# Régime nanoseconde



Laser      ➡ Source Thermique  
 Modèle Plasma      ➡ Méthode Combiné  
*Hydrodynamique + Monte Carlo (DSMC)*

• Retrodiffusion

• Compression du plasma laser

• Compression du gaz ambiant

*Al in O2*

*Ro = 1 mm, P = 70 Pa*

*Nd:YAG (266 nm) laser , τ = 5 ns , R<sub>0</sub> = 1 mm, F = 20 J/cm<sup>2</sup>*

# Modélisation explicite

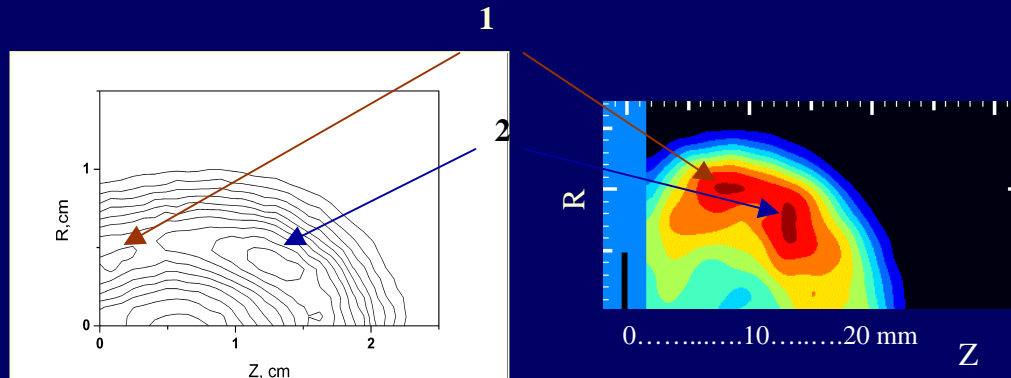
Al in O<sub>2</sub>, P = 13 Pa, t = 3 μs

Calculs LP-DSMC

Expérience LIF

$n_{Al} n_{O_2}$

$n_{AlO}^0$



Les maximums sont dues à un mélange avec le gaz  
(1)-retro-diffusion et (2) flux radiale

T. E. Itina, J. Hermann, P. Delaporte and M. Sentis, *Phys. Rev. E*, (2002)



## Simulation Dirècte Monte Carlo (DSMC) : modifications pour

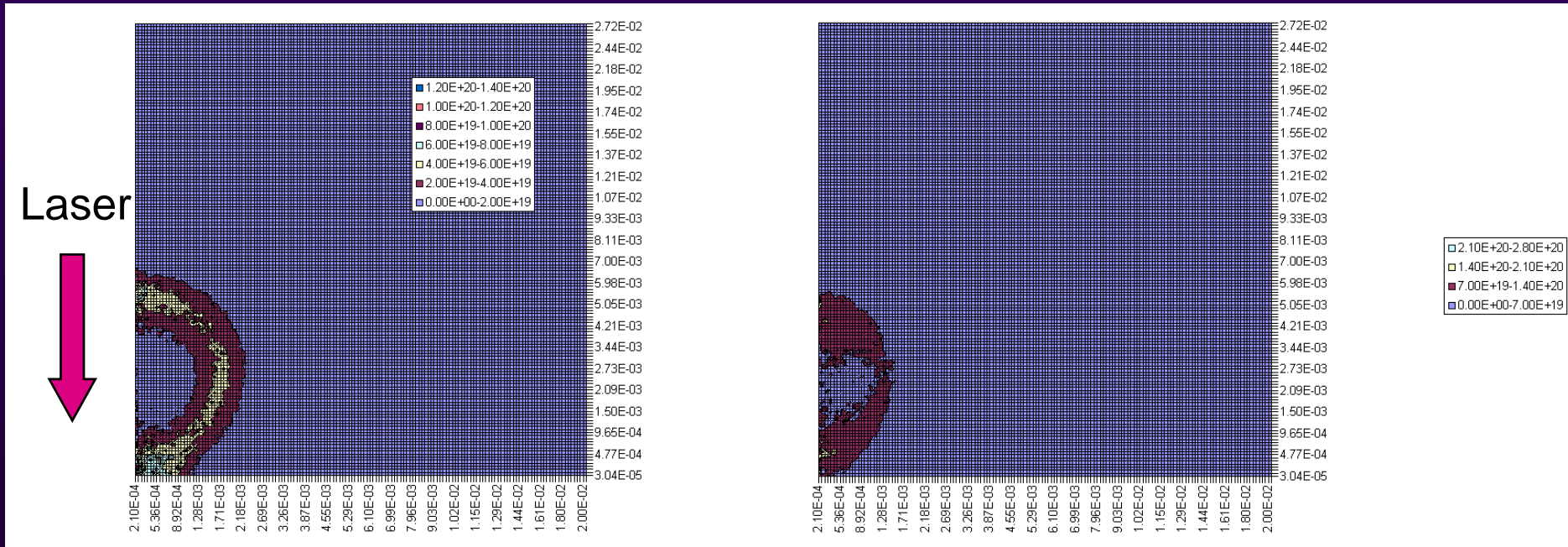
- (i) Collisions non-réactives (élastique et non-élastique)
- (ii) Croissance due aux collisions cluster -monomère
- (iii) Agrégation (collisions cluster-cluster)
- (iv) Évaporation d'un cluster
- (v) Émission de la radiation thermique



# Densité d'agrégats

1<sup>st</sup> : petits agrégats (2-15 atomes)

3<sup>d</sup> : plus grands (100-1000)

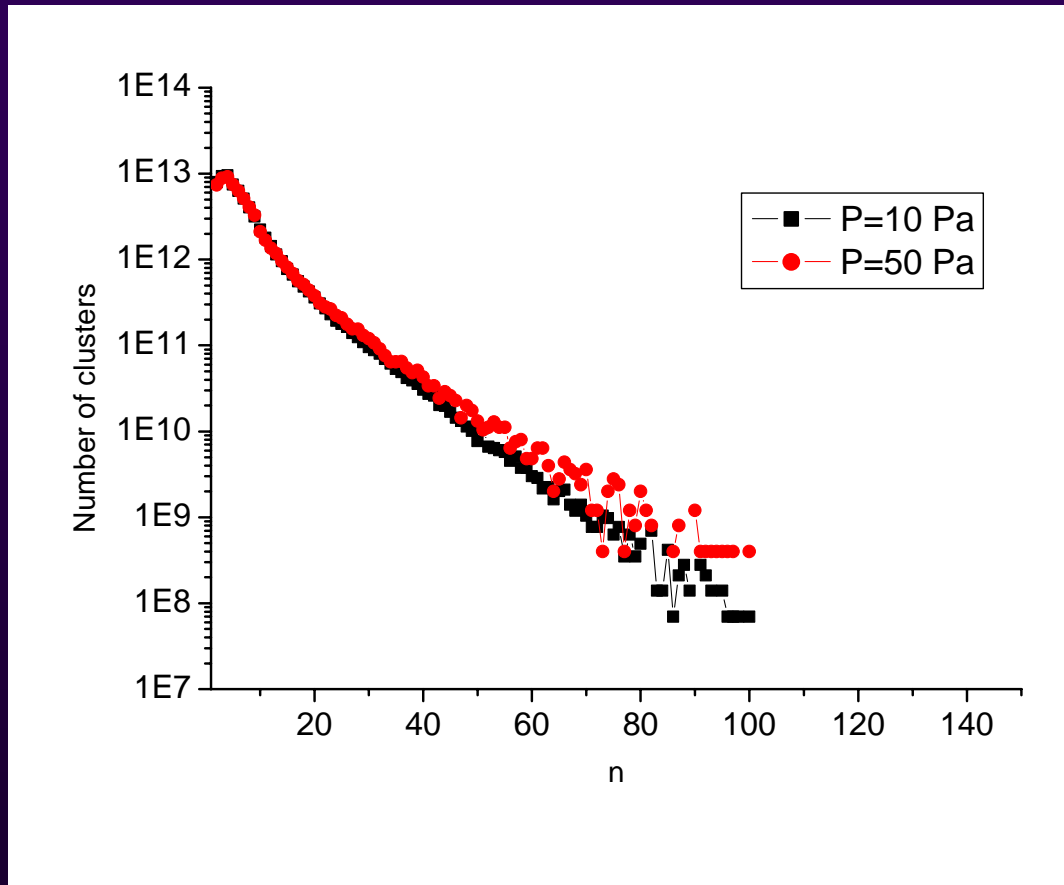


*Ablation d'une cible d'or en présence d'argon (P=10 Pa)*

• Laser nano, délai=3.5 μs

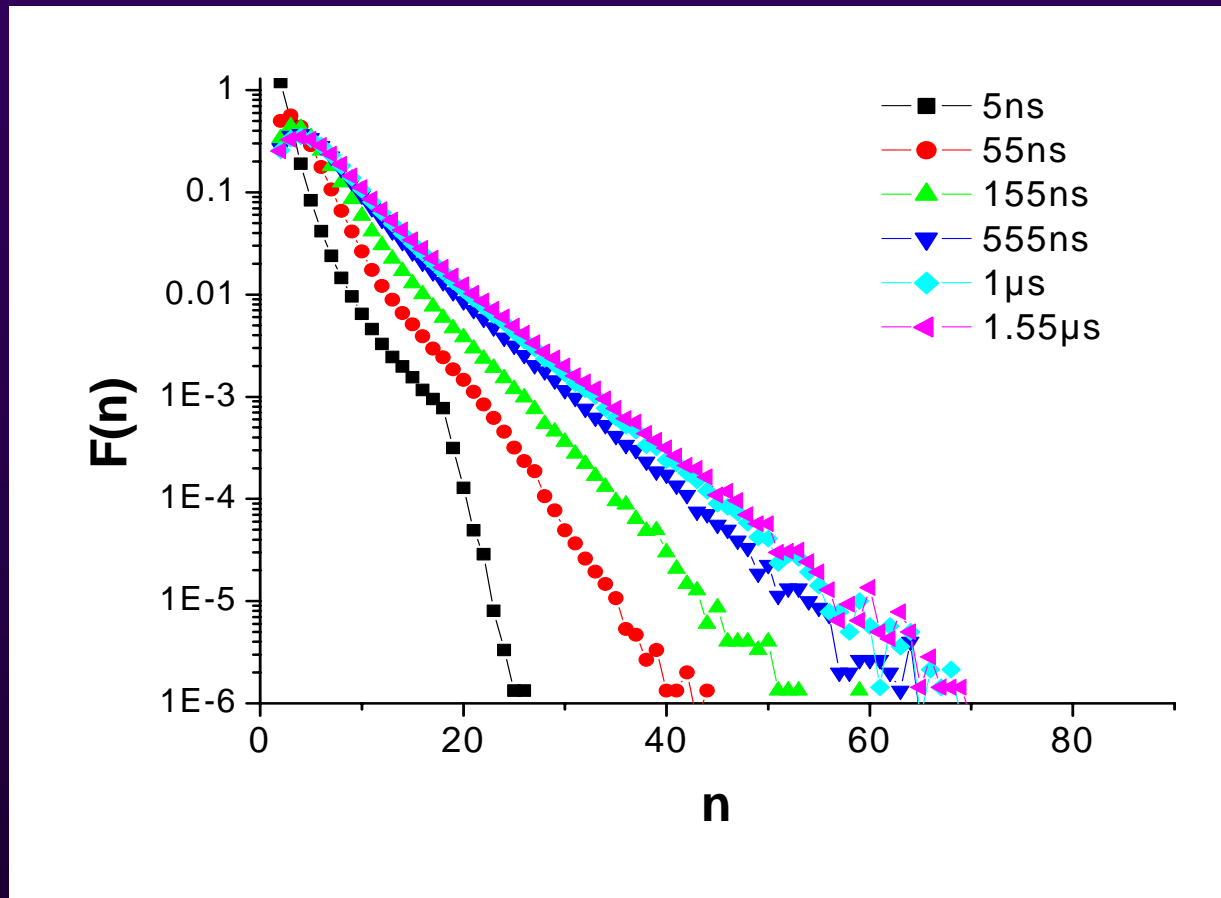


## Distribution en taille (Au dans Ar)



# Evolution des agrégats

Ablation d'une cible de carbone sous vide (12 ps laser)



- croissance => 1.5 μs,
- ensuite: expansion du panache, moins de collisions



## Régime femtoseconde

$\tau < \text{temps de relaxation e-i} \Rightarrow \text{pas d'équilibre e-i}$

- *L'intensité laser est suffisamment élevée  $\Rightarrow$  on peut traiter presque tout les matériaux*
- *Les effets thermiques peuvent être minimisés*
- *Il n'y a pas d'absorption par le plasma*
- *Les agrégats sont présent sous vide*



## Absorption: modèle de Drude

Fonction diélectrique

$$\varepsilon = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2$$

$$\varepsilon_1 = 1 - \frac{n_e}{n_c} \frac{1}{1 + \omega^{-2} \tau^{-2}}$$

$$\varepsilon_2 = \frac{n_e}{n_c} \frac{1}{\omega \tau (1 + \omega^{-2} \tau^{-2})}$$

$$\omega_p = \sqrt{\frac{n_e e^2}{\varepsilon_0 m_e}}$$

Index de réfraction

$$n + ik$$

$$n = \sqrt{0.5 \left( \varepsilon_1 + \sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2} \right)}$$

$$k = \sqrt{0.5 \left( -\varepsilon_1 + \sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2} \right)}$$

Coefficient de réflexion

$$R = \frac{(n-1)^2 + k^2}{(n+1)^2 + k^2}$$

Coefficient d'absorption

$$\alpha = \frac{2\omega k}{c}$$

$$A = 1 - R$$

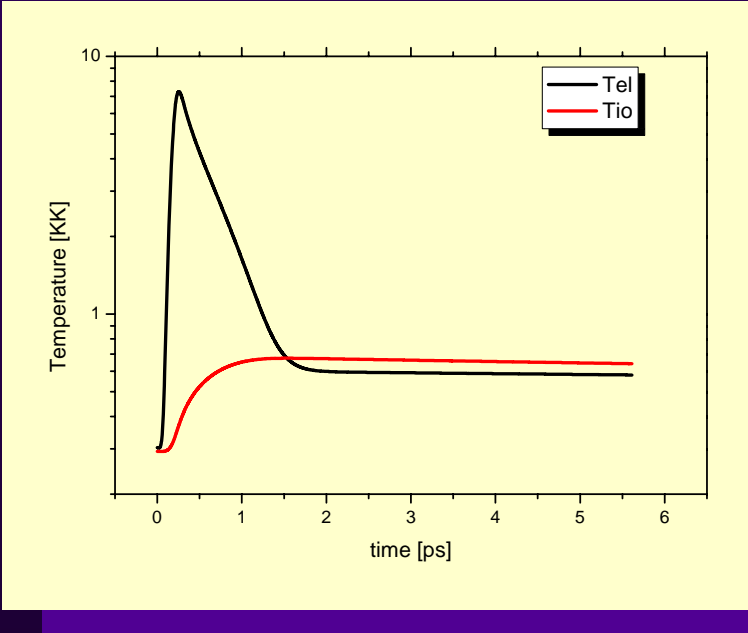
$$Q_{abs} = I(t) A \alpha \exp(-\alpha z)$$



# Régime femtoseconde

$\tau < \text{temps de relaxation e-i} \Rightarrow \text{pas d'équilibre e-i}$

Cibles métalliques: *Modèle à deux températures (TTM)*



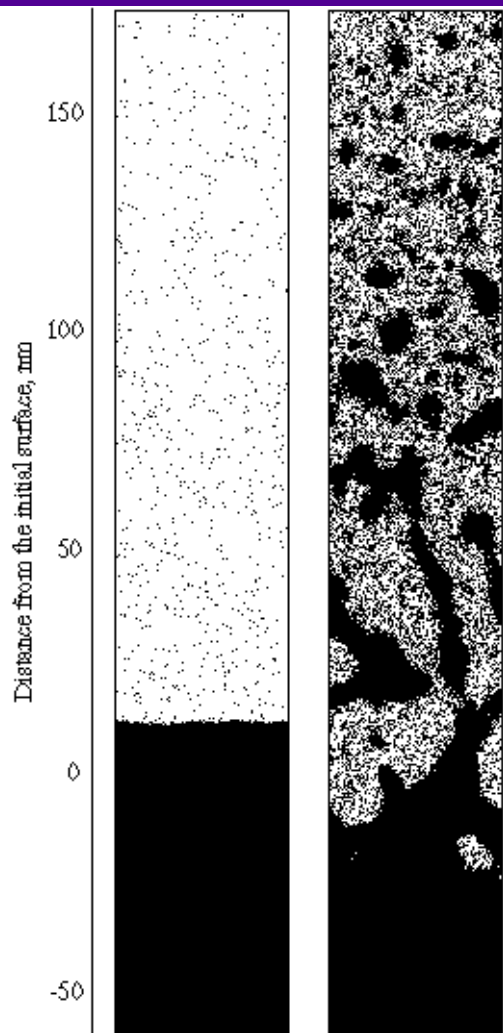
$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( k_e \frac{\partial T_e}{\partial z} \right) - \gamma (T_e - T_i) + Q_{abs}$$

$$C_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( k_i \frac{\partial T_i}{\partial z} \right) + \gamma (T_e - T_i)$$

$$Q_{abs} = I(t) A \alpha \exp(-\alpha z)$$

Ablation:  $V = V_0 \exp(-\rho \Omega / C_i T_i)$

Si ce n'est pas l'évaporation thermique ?



## Mécanismes d'ablation par lasers courts:

- Photo-thermique** (explosion des phases)  
et/ou
- Photo - mécanique** (spallation)
- **Electro - statiques**
- Explosion Coulombienne**

**Mélange d'un gaz et de nano-agrégats**  
(la taille augmente à l'arrière du panache)

Processus sont hors-équilibre

=>difficiles pour la modélisation classique

*Résultats obtenus par Dynamique Moléculaire*

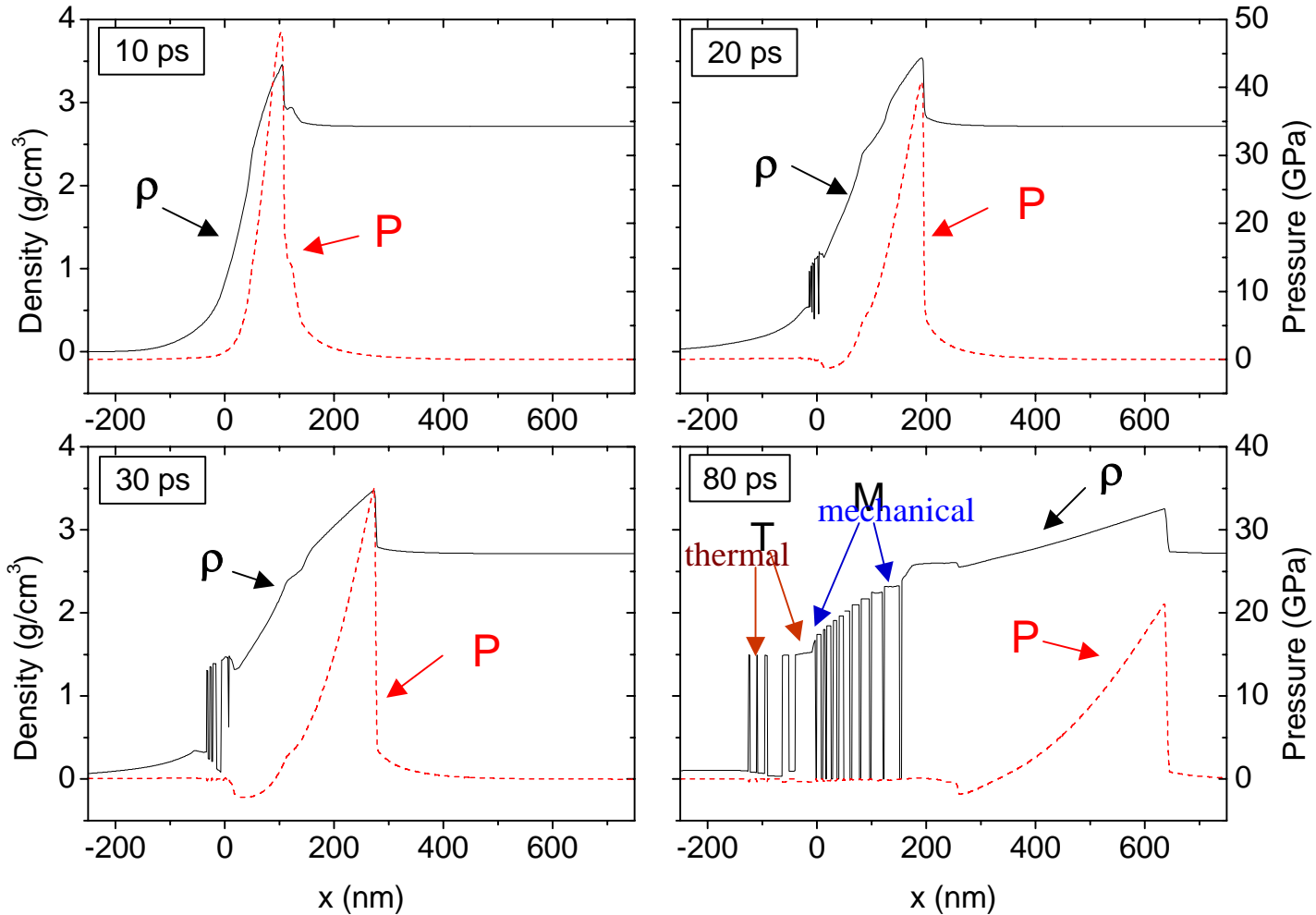


## Hydrodynamic model

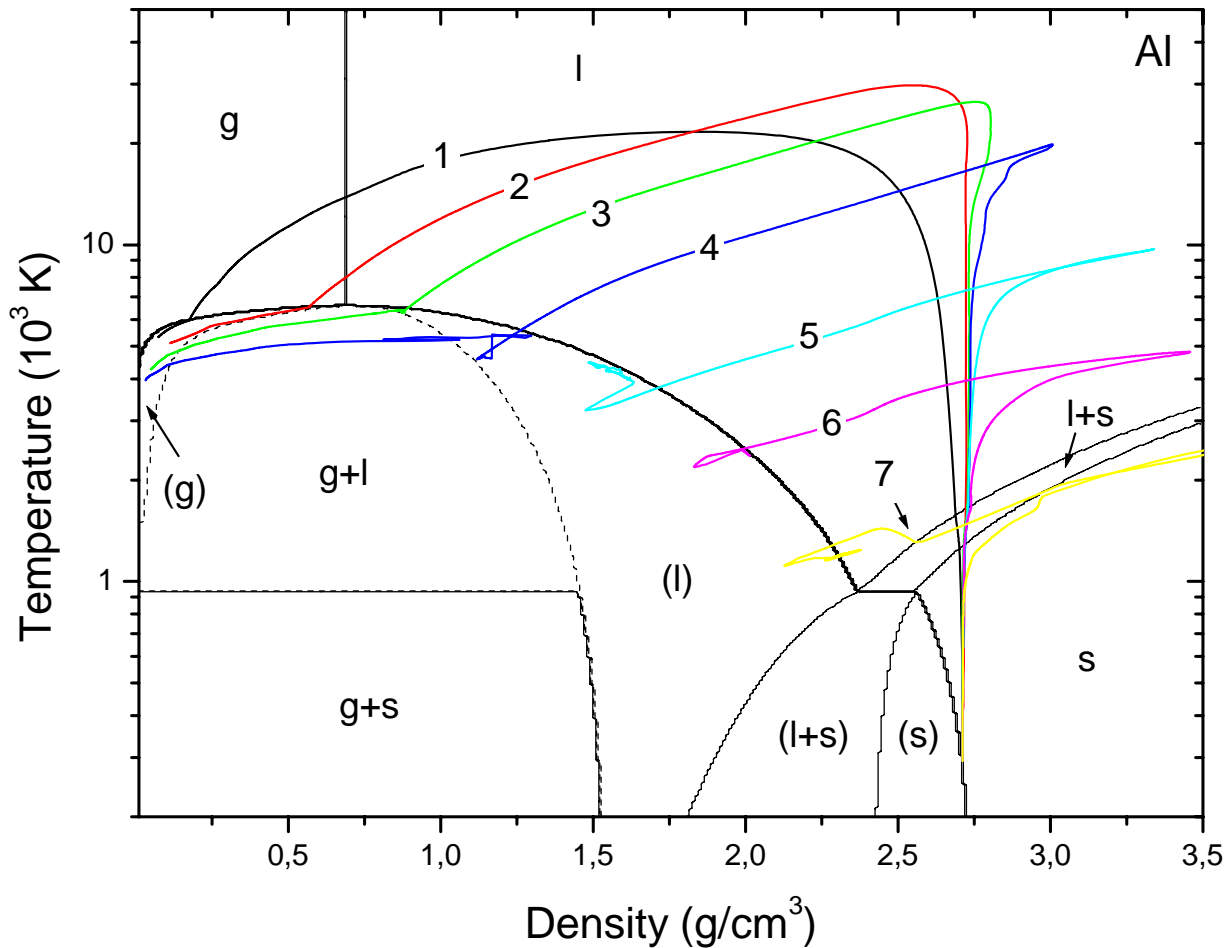
- One-fluid two-temperature model (separate electron and lattice/ion subsystems)
- Godunov method in Euler form (multi-dimensional problems with complex geometry)
- Interface reconstruction algorithm (tracking of interfaces and free surfaces)
- In metastable region: an interplay of thermal (bubble nucleation) and mechanical (fragmentation) criteria

# Densité du panache en fonction de la distance

$F = 5 \text{ J/cm}^2$



# Diagramme de phases



$\tau_L = 100$  fs,  $\lambda = 800$  nm, and  $F = 5.0$  J/cm<sup>2</sup>

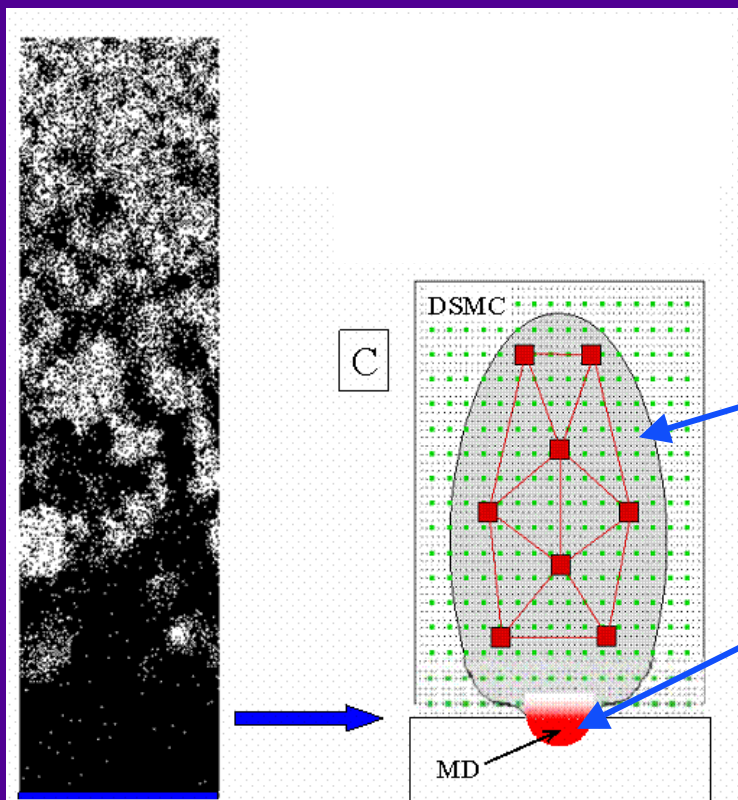
Trajéctaires 1-7: 5, 15, 20, 30, 50, 80, 130 nm, respectivement

## Étude des mécanismes de la formation d'agrégats

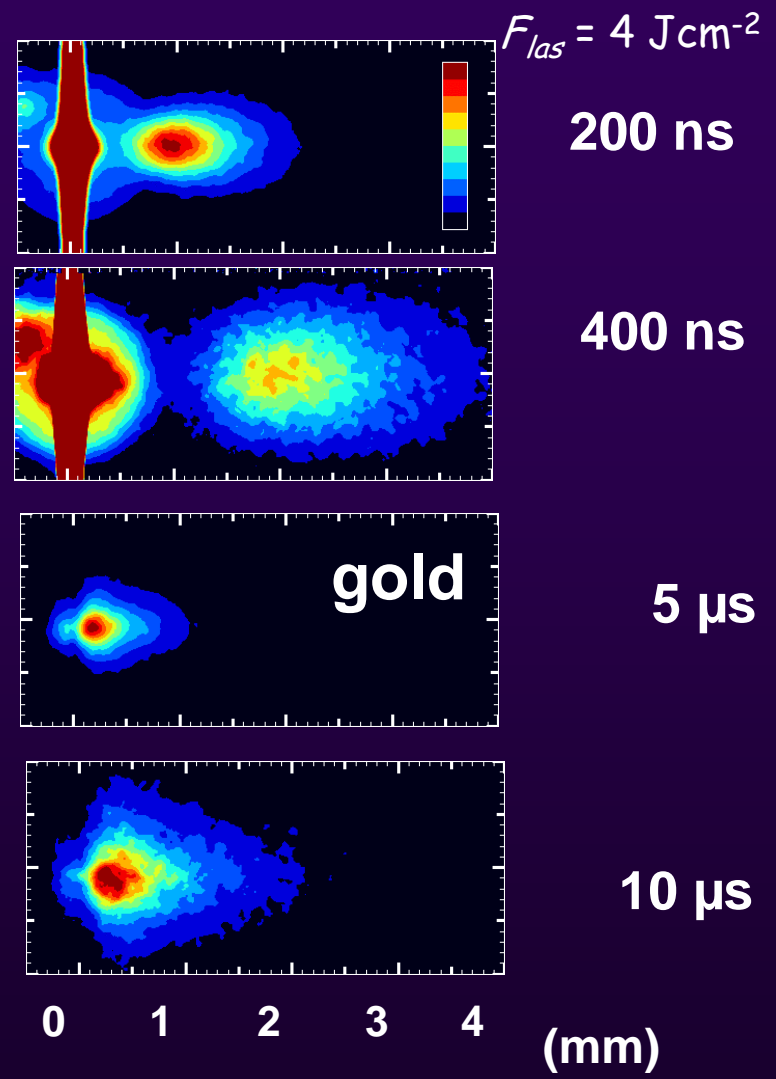
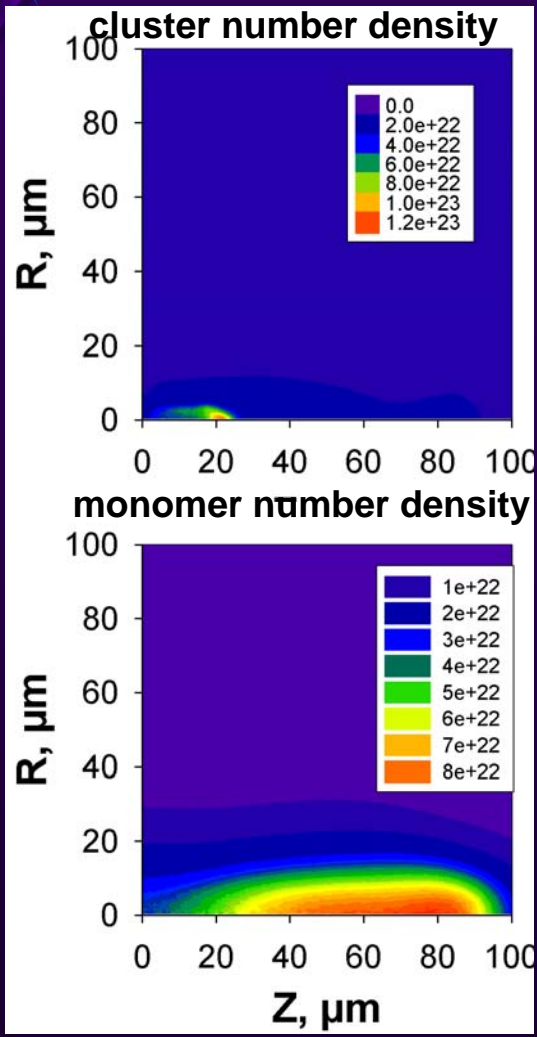
### Couplage:

- Direct Simulation Monte Carlo
- Dynamique Moléculaire

- *Information détaillée*
- *Continu du panache*
- *Distribution en taille des agrégats*



En collaboration avec  
University of Virginia, USA



$t = 50$  ns, pulse width is 15 ps, laser fluence of  $61 \text{ J/m}^2$ , and a laser spot radius of  $10 \mu\text{m}$

Plume images by J. Hermann recorded at different times in ultra-short laser ablation experiments with Cu. Here, pulse duration is 100 fs and laser fluence is  $4 \text{ J/cm}^2$



## RESUME

**Méthodes combinés sont adéquates pour ablation laser**

**-Régime nano -> fusion et évaporation thermique**

**-Régime femto-> onde de détente, décomposition explosive**

- ❖ *Rôle de la longueur d'onde en nano (plus longue => plus d'émission)*
- ❖ *Absence d'absorption par plasma femto*
- ❖ *Panache plasma plus prolongé en femto*
- ❖ *Présence d'agrégats dans un panache crée par laser femto*