

# Journées 2021 25-28 octobre 2021, Palaiseau

atelier

# Plasma laser : diagnostic et modélisation

première partie Plasmas en équilibre

Arnaud Bultel<sup>1</sup> et Jörg Hermann<sup>2</sup>

<sup>1</sup> CORIA, Normandie Université, CNRS, 76801 Saint-Étienne du Rouvray

<sup>2</sup> LP3, CNRS, Aix-Marseille Université, 13009 Marseille







## dépend de nombreux paramètres

#### laser

EMILI

longueur d'onde  $\lambda_{las}$ durée d'impulsion  $\tau_{las}$ énergie  $E_{las}$ fluence  $F_{las}$ focalisation, ...

#### matériau

réflectivité R coefficient d'absorption  $\alpha$ couplage électron-réseau  $\tau_{e-i}$ conductivité thermique,  $K_{th}$ autres propriétés thermophysiques  $C_p$ ,  $T_{fus}$ ,  $T_{vap}$ ,  $H_{fus}$ ,  $H_{vap}$ 

#### environnement

nature du gaz pression P<sub>gaz</sub> liquide



longueur de pénétration optique

$$\delta_{opt} = \alpha^1$$

longueur de diffusion thermique

$$\delta_{th} = 2\sqrt{\chi \, \tau_{las}}$$

$$\chi = \frac{k_{th}}{\rho C_p}$$





## dépend de nombreux paramètres

#### laser

DR





GDR

EMILI

## dépend de nombreux paramètres



## Chauffage des électrons par laser

 $\Im$  dépendance de  $\lambda_{las}$ 

Énergie pondéromotrice (quiver energy)

Énergie cinétique moyenne d'un électron dans un champs EM





EMILI



champ

 $e^2 \varepsilon^2$ 

 $E_q =$ 

électrique





#### chauffage des électrons nécessite collisions







## Chauffage des électrons par laser

 $\Im$  dépendance de  $\lambda_{las}$ 

taux de gain d'énergie

EMILI

The strain the strain the strain the strain the strain the strain terms of terms

 $\frac{dE}{dt} = E_q \times v_{coll}$  fréquence de collision  $\frac{dE}{dt} = \frac{e^2 \varepsilon^2}{m\omega^2} \times v_{eff} \frac{\omega^2}{\omega^2 + v_{eff}^2}$  fréquence de collision effective

(plasma fortement ionisé @ interaction avec multiple particules)

 $v_{eff} > \omega \Rightarrow$  taux de chauffage diminue avec  $v_{eff}$ 

collisions multiples au cours d'un cycle optique

 $v_{eff} < \omega \quad \Rightarrow \quad \text{taux de chauffage diminue avec } \omega$ 

regimeration taux de chauffage augmente avec  $\lambda_{las}^2$ 







## **Chauffage des électrons par laser**

GDR





## In dépendance de $\lambda_{las}$





GDR



## $regime de \tau_{las}$

#### laser





## The second ance de $\tau_{las}$







## dépend de nombreux paramètres



#### grande variabilité des propriétés

#### ⇒ applications nombreuses

- traitement et nettoyage de surface
- micro-usinage et nanostructuration des matériaux
- dépôt de couches minces (PLD)
- génération de nanoparticules
- analyse des matériaux (LIBS)
- source de rayonnements XUV, ...

#### complexité des mécanismes mis en jeu

#### ⇒ modélisation difficile

- aide à la compréhension
- description de tout le processus impossible à ce jour

#### diagnostic couplé à la modélisation P





### GDR cnrs **Imagerie rapide EMILI** à l'aide d'une caméra ICCD porte d'observation laser $\Delta t_{gate} << t_{mesure}$ laser temps t<sub>las</sub> t<sub>mesure</sub> 5 ns ICCD + $\delta_{opt}$ $\delta_{th}$













DR

**EMILI** 

CNrs









Position latérale (mm)

15



DR

**EMILI** 









DR

**EMILI** 









Position latérale (mm)



**FDR** 

**EMILI** 









Position latérale (mm)



GDR

**EMILI** 

CNrs









GDR







GDR







GDR

**C**nrs









GDR

**C**nrs



caractérisation de la dynamique d'expansion





GDR

**EMILI** 

CNrs





caractérisation de la dynamique d'expansion



modèle Sedov-Taylor Propagation l'onde de choc

$$Z = \gamma (\frac{E_0}{\rho_0})^{1/2} t^{2/5}$$





GDR

EMILI

**C**nrs



## In dépendance de $\lambda_{las}$





<u>- D R</u>





## **Densité critique**

- = densité électronique pour laquelle le plasma devient opaque
- Champs électrique laser crée écarts de neutralité
- $\Rightarrow$  le plasma réagit

fréquence plasma (électronique) 
$$\omega_p = \sqrt{\frac{e^2 n_e}{\varepsilon_0 m}}$$

 $\Rightarrow$  onde EM peut se propager si  $\omega_{rad} > \omega_p$ 

densité critique =  $n_e$  pour laquelle  $\omega_p$  =  $\omega_{rad}$ 

exemple : laser CO<sub>2</sub> ( $\lambda_{las}$  = 10,6 µm)  $\Rightarrow n_{crit}$  = 1×10<sup>19</sup> cm<sup>-3</sup>

plasma atmosphérique opaque pour laser CO<sub>2</sub>







## **Densité critique**

#### = densité électronique pour laquelle le plasma devient opaque

- Champs électrique laser crée écarts de neutralité
- $\Rightarrow$  le plasma réagit

fréquence plasma (électronique)  $\omega_p = \sqrt{\frac{e^2 n_e}{\varepsilon_0 m}}$ 

 $\Rightarrow$  onde EM peut se propager si  $\omega_{rad} > \omega_p$ 

densité critique =  $n_e$  pour laquelle  $\omega_p = \omega_{rad}$ 

exemple : laser CO<sub>2</sub> ( $\lambda_{las} = 10,6 \ \mu m$ )  $\Rightarrow n_{crit} = 1 \times 10^{19} \ cm^{-3}$ 

<sup>©</sup> plasma atmosphérique opaque pour laser CO<sub>2</sub>

#### génération d'une onde d'absorption









DR

EMILI



## **Ombroscopie ultrarapide**





SR



## dépendance de P<sub>gaz</sub>



EMILI

longueur d'onde  $\lambda_{las}$ durée d'impulsion  $\tau_{las}$ énergie  $E_{las}$ fluence  $F_{las}$ focalisation, ...

#### matériau

réflectivité R coefficient d'absorption  $\alpha$ couplage électron-réseau  $\tau_{e-i}$ conductivité thermique,  $K_{th}$ autres propriétés thermophysiques  $C_p$ ,  $T_{fus}$ ,  $T_{vap}$ ,  $H_{fus}$ ,  $H_{vap}$ 

#### environnement

nature du gaz pression P<sub>gaz</sub> liquide



#### sous vide

- $\Rightarrow$  expansion libre
- ⇒ collisions limitées
  - à la phase initiale d'expansion
- ⇒ état « d'ionisation congelée »

#### en présence d'un gaz

- $\Rightarrow$  interaction vapeur-gaz
- ⇒ processus collectifs/non-collectifs (ondes de choc, diffusion, ...)
- $\Rightarrow$  effet de confinement
- $\Rightarrow$  durée de vie augmente avec  $P_{gaz}$



## **Fluorescence induite par laser**

### observation du plasma « froid »





GDR

#### dépôt de couches minces par ablation laser (PLD)

PLD réactive 🖙 synthèse de films de haute pureté



#### réactions en gaz phase dépendent de la pression

 $P_{gaz}$  < 10 Pa @ synthèse de la couche mince sur le substrat  $P_{gaz}$  > 10 Pa @ réactions dans le volume

32

#### décharge RF auxiliaire pour nitruration







à la pression atmosphérique

Plasma proche de l'équilibre thermodynamique local

⇒ simulation du spectre d'émission possible



EMILI

transfert de rayonnement

$$n(z)\frac{d}{dz}\left(\frac{I(z)}{n^2(z)}\right) = \varepsilon(z) - \alpha(z)I(z)$$

I(z) I(z+dz)n(z)



plasma uniforme  $I(z) = \frac{\varepsilon}{\alpha}(1 - e^{-\alpha z})$ ETL 🖙 Kirchhoff

 $B^{o}_{\lambda} = \frac{\varepsilon}{\alpha}$   $B^{o}_{\lambda} =$ luminance spectrale du corps noir

luminance spectrale

plasma:  $n \cong 1$ 

- $B_{\lambda} = B_{\lambda}^{o}(1 e^{-\alpha L})$
- $\alpha$  = coefficient d'absorption
- L = diamètre du plasma le long l'axe d'observation







#### couplée à la modélisation du plasma en ETL

## Plasma d'ablation laser sous air en ETL ?

Lam et al. Spectrochimica Acta Part B (2014)



 $T_{ion}^{exc}$  = température d'excitation des ions Al<sup>+</sup>  $T_{atom}^{exc}$  = température d'excitation des atomes Al  $T_{rot}$  = température rotationnelle des molécules AlO

$$T_{ion}^{exc} \cong T_{atom}^{exc} > T_{rot}$$

 $\Rightarrow$  conclusion de Lam et al.

### plasma hors équilibre





### couplée à la modélisation du plasma en ETL

## Plasma d'ablation laser sous air en ETL?











### couplée à la modélisation du plasma en ETL

## Plasma d'ablation laser sous air en ETL ?



luminance spectrale :

 $B = \frac{B_{C}^{0}(1 - e^{-\alpha_{C}L_{C}})}{e^{-\alpha_{P}L_{P}}} + B_{C}^{0}(1 - e^{-\alpha_{P}L_{P}})$ 

coefficient d'absorption :

$$\alpha(\lambda,T) = \pi r_0 \lambda^2 f_{lu} n_l P(\lambda_0,\lambda) (1 - e^{-hc/\lambda kT})$$



molecules :

T, n<sub>e</sub>, L

elemental fractions

LTE plasma composition

absorption coefficient

(spectral line profile)

radiation transport

(uniform or non-uniform)

compare to measured spectrum



boucle de calcul solution analytique de l'équation de transfert radiatif

➡ itération rapide







DR

EMILI

#### couplée à la modélisation du plasma en ETL



### couplée à la modélisation du plasma en ETL

DR



## dépendance de la nature du gaz ?



#### environnement nature du gaz

pression P<sub>gaz</sub> liquide

GDR









## Influence de la nature du gaz

CNrs

DR





## Influence de la nature du gaz

CNrs

EDR





#### spectroscopie avec spectromètre à échelle Ś

GDR

**EMILI** 

#### Iarge gamme spectrale avec grand pouvoir de résolution







### diagnostic précis possible

#### sélection des raies = compromis

#### + autoabsorption

EMILI

 $\Rightarrow$  erreur de mesure **augmente** avec au

+ rapport signal-sur-bruit

 $\Rightarrow$  erreur de mesure **diminue** avec  $\tau$ 

### exemple : acier

*mesure n<sub>e</sub>* avec Fe I 538.33 and Fe I 382.78 nm

spectre Echelle

 $\ensuremath{^{\textcircled{CP}}}$  observation simultanée de  $\approx 10^4$  raies

### mesure des paramètres Stark des centaines de raies





#### diagnostic précis possible



⇒ raies intenses sature à la luminance du corps noir



#### The mean of the m



 $B_{\lambda} = B_{\lambda}^{o}(1 - e^{-\tau})$  rightarrow optiquement épais ( $\tau >> 1$ )  $\Rightarrow B_{\lambda} = B_{\lambda}^{o}$ 

⇒ raies intenses sature à la luminance du corps noir



DR



température d'excitation atomique = température du corps noir



⇒ raies intenses sature à la luminance du corps noir





température d'excitation atomique = température du corps noir

(CNrs)

SR





## avec spectromètre à échelle

Iarge gamme spectrale avec grand pouvoir de résolution



#### étalonnage extrêmement sensible à la température

étalonnage spectral et fonction de réponse

### 👁 étalonnage en intensité difficile

source requise avec faible variation en intensité sur large gamme spectrale



**S** 





# **EXAMPLE** Etalonnage du spectromètre par plasma laser

#### plasma uniforme en ETL @ calcul précis du spectre

ablation de l'acier @ spectre riche, valeurs A<sub>ul</sub> précises sur NIST



Réponse de l'appareil déduite du rapport I<sub>mes</sub> / I<sub>comp</sub>







#### GDR **Etalonnage du spectromètre par plasma laser EMILI**



écart-type des fluctuations = intervalle de confiance moyenne des  $A_{ul}$  = 15%

#### $regimerries plasma laser = moyen pour mesurer <math>A_{ul}$





## Plasma laser : diagnostic et modélisation

première partie

## Plasmas en équilibre

plasma produit par ablation laser :

- processus complexe, dépend de nombreux paramètres
- rande variabilité des conditions exp. et des propriétés du plasma
- modélisation de la dynamique d'expansion « qualitative »
- diagnostic pour meilleur compréhension

(imagerie rapide, ombroscopie ultrarapide, FIL, spectroscopie optique, ... )

plasma atmosphérique produit par ablation laser nanoseconde :

- équilibre thermodynamique local
- The second secon
- perspectives comme source de rayonnement « idéale » (étalonnage des spectromètres, mesures de données spectro., analyse élémentaire, ...)



EMIL



