الجمهوريـــة الجزائريـــة الديمقراطيـــة الشعبيـــة
REPUBLIQUE ALGÉRIENNE DÉMOCRATIQUE ET POPULAIRE
وزارة التعليـــم العـــالي و البحـــث العلـــمي
MINISTER DE L'ENSIEGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE
جامعة باجـي مختـار-عنابـة-
UNIVERSITÉ BADJI MOKHTAR - ANNABA -

FACULTÉ DES SCIENCES
DEPARTEMENT DE PHYSIQUE
LABORATOIRE DES SEMI-CONDUCTEURS ET APPLICATIONS

THÈSE

Présentée en vue de l'obtention du diplôme de

DOCTORAT

Étude des phénomènes conduisant à l'explosion des agrégats soumis à des champs laser femtosecondes intenses.

Présentée par

Abderrazzek BRICHNI

Soutenue le 27 Avril 2015 devant le jury

DIRECTEUR DE THESE : Noureddine BOUCERREDJ		**Prof. Université d'Annaba**
Président (e) :	**Zahia HADJOUB**	**Prof. Université d'Annaba**
Examinateurs :	**Athmane MEDDOUR**	**Prof. Université de Guelma**
	Saidi KHIARI	**Prof. Université d'El –Tarf**

Année universitaire : 2014/2015

بِسْمِ اللَّهِ الرَّحْمَٰنِ الرَّحِيمِ

REMERCIEMENT

Je remercie, tout d'abord le bon Dieu pour m'avoir donné le courage et la volonté pour réaliser cette thèse; qui représente le travail d'un peu plus de quatre ans de recherche. Ce travail a été réalisé à l'université Badji Mokhtar, Annaba (UBMA) au sein du Laboratoire des Semi-Conducteurs (LSC).

Je tiens à remercier et à exprimer ma très sincère reconnaissance à la directrice du LSC, ***Mme. Zahia Hadjoub-Doghmane*** *professeur à l'UBMA pour m'avoir accueilli dans le laboratoire, je tiens aussi à la remercier pour sa gentillesse, sa disponibilité et sa confiance dont t'elle m'a fait clairement sentir.*

Mes remerciements vont aussi à celui qui m'a guidé, aidé et conseillé, mon très cher encadreur ***Mr. Noureddine Boucerredj****, professeur à l'UBMA, je le remercie pour son dévouement et surtout pour son suivi attentif de l'avancement de cette thèse.*

J'adresse toute ma gratitude à madame le professeur ***Zahia Hadjoub-Doghmane*** *pour m'avoir fait l'honneur d'accepter d'examiner ce manuscrit et de présider le jury de la thèse.*

Je tiens à exprimer tous mes remerciements à ***Mr. Athmane Meddeur*** *professeur et doyen de la faculté des sciences à l'université 8 Mai 1945, Guelma et* ***Mr. Khiari Saaidi*** *professeur à l'université Chadli Benjdid, El-Tarf pour l'intérêt qu'ils ont porté à cette étude en acceptant d'en être les rapporteurs et en participant au jury.*

Je remercie aussi mes très chers parents qui ont su m'encourager et me soutenir tout au long de ce parcours.

Je conclue par remercier toute personne qui a contribuée de prés ou de loin à la réalisation de cette thèse.

Abderrazek

دراســة الظــواهر التي تؤدي إلى انفجــار المجاميــع الخاضعــة لحـقول ليزريّـة فامتوثانية عاليــة الشدة

من طرف: **بريشنـــي عبـدالرزاق**

ملــخص

إن استخدام نبضات الليزر المكثفة والفائقة القصر (بضلع مئات من الفامتوثانية) على بضعة نانو متر من أهداف معدنية (10^{14} W/ cm^2>) يسمح لنا بتشكيل بلازما مكثفة وساخنة , وقد أدت دراسة مجموعات الصوديوم المعدنية (Na) التي تحتوي على 5.10^3 ذرة في المجموعة الخاضعة لحقول ليزريّة فامتوثانية ومكثفة للحصول على طاقة إثارة قوية يمكن أن تكون مصدر للإلكترونات ذات طاقة عالية , وأيونات طاقوية ذات شحنات عالية التي تؤدي الى عمليات الانشطارالنووي .

في هذا العمل , وذلك باستخدام نسخة معدلة من نموذج نانوبلازما المقترح أصلاً من قبل T. Ditmire و آخرون, هذا النموذج الفينومينولوجي وحيد البعد يسمح لنا بوصف الديناميكية التي تؤدي إلى انفجار المجاميع الكبيرة ومن خلاله استطعنا القيام بدراسة تغيرات مختلف العوامل المتغيرة لهذا النموذج اعتمادا على عدد الذرات والطول الموجي وشدّة الليزر المستخدم.

وقد وجدنا أن بعد انفجار المجاميع انبعاث الإلكترونات ذات طاقة عالية تصل قيمتها إلى ما يقارب 45 كيلو إلكتروفولط, وكذلك وجدنا أن الضغط الكولومبي أقل قيمة من الضغط الهيدروديناميكي ,لذلك يمكننا القول أن الضغط الهيدروديناميكي هو المسؤول عن ديناميكية تمدد و انفجار المجاميع .

الكلمات المفتاحية : ليزر فمتو ثانية عالي الشدة - مجاميع المعدن – نانو بلازما- نانومواد.

Étude des phénomènes conduisant à l'explosion des agrégats soumis à des champs laser femtosecondes intenses.

Par : BRICHNI Abderrazek

Résumé

L'utilisation des impulsions lasers intenses et ultracourtes (quelque centaine de femtoseconde) focalisées sur quelques nanomètres d'une cible métallique ($> 10^{14} W/cm^2$) nous permet de former un plasma chaud et dense. L'étude des clusters métalliques de Sodium (Na), contenant 5.10^3 atomes par agrégat, soumis à des champs laser femtosecondes intenses a conduit à une forte énergie d'excitation qui peut être l'origine des électrons de fortes énergies, des ions énergétiques de hautes charges ou des processus de fragmentation. Dans ce travail, et en utilisant une version modifiée du modèle nanoplasma initialement proposé par T. Ditmire et al, ce modèle phénoménologique unidimensionnel permet de décrire la dynamique conduisant à l'explosion de gros agrégats, on a étudié en détail la variation des différents paramètres du nanoplasma en fonction de la longueur d'onde, du nombre d'atomes ainsi que de l'intensité du laser femtoseconde utilisée. On a trouvé qu'après l'explosion de l'agrégat, l'énergie des électrons émis atteint une valeur de l'ordre de 45 KeV. On a trouvé que la pression coulombienne est moins importante que la pression hydrodynamique, donc on peut dire que la pression hydrodynamique est responsable de la dynamique d'expansion et d'explosion de l'agrégat.

Mot clés : Nanomatériaux, Cluster métalliques, Laser femtoseconde, Nanoplasma.

Study of phenomena leading to the explosion of clusters submitted to intense femtosecond laser fields

By: BRICHNI Abderrazek

Abstract

The use of intense ultrashort laser pulses (few hundred femtosecond) focused on a few nanometers of a metal cluster ($> 10^{14} W/cm^2$) allows us to form a hot and dense plasma. The study of metal clusters Sodium (Na), containing 5.10^3 atoms per cluster and subjected to intense femtosecond laser fields lead to a high excitation energy that can be the origin of highly energy electrons, energetic ions and fragmentation process. In this work, and using a modified version of the nanoplasma model originally proposed by T. Ditmire and al., This phenomenological one-dimensional model describe the dynamics leading to the explosion of large cluster. We have studied in detail the variation of different nanoplasma's parameter depending on the wavelength, the number of atoms and the intensity of used femtosecond laser. We have found that after the explosion of the cluster, the energy of the emitted electrons attains a value of the order of 45 keV. We have also found that the Coulomb pressure is less than the hydrodynamic pressure, so we can say that the hydrodynamic pressure is responsible of the dynamics of expansion and explosion of the cluster.

Keys words: Nanomaterials, Metal Clusters, Intense femtosecond laser, Nanoplasma.

Liste des symboles

I_0	Intensité d'une impulsion laser
τ	Taux d'impulsion laser
CPA	Chirped Pulse Amplification
CEP	Carrier- Enveloppe Phase
ω_0	Fréquence fondamentale du laser
E	Champ électrique
B	Champ magnétique
c	Vitesse de la lumière dans le vide
ε_0	Permittivité du vide
m_e	Masse de l'électron
m_i	Masse de l'ion
e	Charge élémentaire
$\vec{j}$	Densité de courant
K_B	Constante de Boltzmann
h	Constante de Planck
Z	Numéro atomique d'un élément
λ	Longueur d'onde du laser
K	Vecteur d'onde laser
ω_e, ω_{pe}	Pulsation de plasma
n_e	Densité électronique
n_c	Densité critique
ρ	Densité de charge ou masse volumique
T_e	Température électronique
μ_0	Perméabilité magnétique du vide
ν	Fréquence de collision

Liste des Figures

Figure	Titre	page
	Chapitre I	
Figure I.1	*Simulation de l'arrangement atomique de petits agrégats. A) agrégat en forme d'icosaèdre régulier composé de 55 atomes d'argent. B) agrégat de type "cage" formé par 60 atomes de carbone.*	8
Figure I.2	*Classification des agrégats suivant le nombre de composants N. d_{Na} correspond au diamètre d'un agrégat de sodium dans la gamme de taille considérée, et N_S/N_V est le rapport du nombre d'atomes en surface et du nombre d'atomes internes. D'après.*	9
Figure I.3	*Classification des agrégats suivant la nature de la liaison interatomique, avec des exemples, et des énergies de liaison typiques. D'après.*	11
Figure I.4	*Structure d'un agrégat composé de 60 atomes de carbone (C_{60}) identifiée à la forme d'un ballon de football*	13
Figure I.5	*Schéma d'un agrégat sphérique dense.*	15
Figure I.6	*Estimation de l'évolution du nombre d'atomes en fonction du diamètre d'un agrégat de cobalt ($r_s$vaut approximativement 0,1379 nm).*	16
	Chapitre II	
Figure II.1	*Schéma du principe laser femtoseconde.*	25
Figure II.2	*Champ électrique (en rouge) et intensité temporelle associée (en bleu) d'une impulsion de durée à mi-hauteur : a) de 25 FS et b) de 5 FS (λ_0 = 800 nm). Δt et et τ sont respectivement les durées à mi-hauteur et à $1/e^2$ en intensité de l'impulsion. Φ_0 est la CEP de l'impulsion.*	27
Figure II.3	*Schéma des différents processus d'ionisation par effet de champ.*	36
	Chapitre III	
Figure III.1	*Schémas représentant les processus pris en compte par le model nanoplasma. L'agrégat est représenté par le cercle en trait plein) : La polarisation et le champ à l'intérieur de l'agrégat(a), l'ionisation par effet de champ(b), l'absorption d'énergie(c), l'ionisation collisionnelle (d), l'émission électronique (e), l'expansion de l'agrégat (f).et finalement l'explosion de l'agrégat (g).*	51
Figure III.2	*Amplification ou réduction du champ interne par rapport au champ laser en fonction de la densité électronique normalisée à la densité critique pour une fréquence de collision électron-ion telle que* $\frac{\upsilon_{ei}}{\omega} = 0{,}1$ $(-)$ *telle que* $\frac{\upsilon_{ei}}{\omega} = 0{,}5$ $(--)$.	56

Figure III.3	*Organigramme des étapes de simulation.*	71
Chapitre IV		
Figure IV.1	*Variation des champs externe et interne en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour :* $I = 5.10^{21}$ *W/m², λ=800 nm et t=150 fs..*	75
Figure IV.2	*Variation de l'énergie totale en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour :* $I = 5.10^{21}$ *W/m², λ=800 nm et t=150 fs.*	76
Figure IV.3	*Variation de la densité électronique normalisée par la densité critique* $\frac{n_e}{n_c}$ *en fonction du temps pour:* $I = 5.10^{21}$ *W/m²,λ=800, N=5000 atomes et t=150 fs.*	76
Figure IV.4	*Variation des pressions hydrodynamique et colombienne en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour :* $I = 5.10^{21}$ *W/m², λ=800 nm et t=150 fs.*	77
Figure IV.5	*Variation de rayon du plasma en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour :* $I = 5.10^{21}$ *W/m², λ=800 nm et t=150 fs.*	78
Figure IV.6	*Variation de la pression hydrodynamique en fonction du rayon pour l'agrégat du sodium (*$I = 5.10^{21}$ *W/m², 5000 atomes, λ=800 nm et t=150 fs.*	79
Figure IV.7	*Variation des champs internes en fonction du temps pour: (λ=800nm, N=5000 atomes et t=150 fs) et différentes valeurs d'intensités du laser.*	80
Figure IV.8	*Variation de l'énergie totale en fonction du temps pour: (λ=800nm, N=5000 atomes et t=150 fs) et différentes valeurs d'intensités du laser.*	81
Figure IV.9	*Variation de la densité électronique normalisée par la densité critique* $\frac{n_e}{n_c}$ *en fonction du temps pour: λ=800, N=5000 atomes, t=150 fs, et différentes valeurs d'intensités du laser.*	82
Figure IV.10	*Variation des pressions colombiennes en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : λ=800 nm, t=150 fs, et différentes valeurs d'intensités du laser.*	82
Figure IV.11	*Variation des pressions hydrodynamiques en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : λ=800 nm, t=150 fs, et différentes valeurs d'intensités du laser.*	83
Figure IV.12	*Variation des vitesses d'expansions en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : λ=800 nm, t=150 fs, et différentes valeurs d'intensités du laser.*	84
Figure IV.13	*Variation des champs internes en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour :*	85

	$I=5.10^{21}W/m^2$, t=150 fs, et différentes valeurs de longueur d'onde.	
Figure IV.14	*Variation des énergies totale en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21}W/m^2$, t=150 fs, et différentes valeurs de longueur d'onde.*	86
Figure IV.15	*Variation de la densité électronique normalisée par la densité critique n_e/n_c en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21}W/m^2$, t=150 fs, et différentes valeurs de la longueur d'onde.*	87
Figure IV.16	*Variation des pressions colombiennes en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21}W/m^2$, t=150 fs, et différentes valeurs de la longueur d'onde.*	87
Figure IV.17	*Variation des pressions hydrodynamique en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21}W/m^2$, t=150 fs, et différentes valeurs de la longueur d'onde.*	88
Figure IV.18	*Variation des champs interne et externe en fonction du temps de l'agrégat du Na (5.10^6 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21}W/m^2$,* λ=800 nm, *t=150 fs.*	90
Figure IV.19	*Variation des champs interne et externe en fonction du temps de l'agrégat du Na (5.10^8atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21}W/m^2$,* λ=800 nm, *t=150 fs.*	90
Figure IV.20	*Variation des énergies totales en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21}W/m^2$,* λ=800 nm, *t=150 fs.*	91
Figure IV.21	*Variation des énergies totales en fonction du temps de l'agrégat du Na (5.10^6 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21}W/m^2$,* λ=800 nm, *t=150 fs.*	92
Figure IV.22	*Variation de la densité électronique normalisée par la densité critique n_e/n_c en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21}W/m^2$,* λ=800 nm, *t=150 fs.*	93
Figure IV.23	*Variation de la densité électronique normalisée par la densité critique n_e/n_c en fonction du temps de l'agrégat du Na (5.10^6 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21}W/m^2$,* λ=800 nm, *t=150 fs.*	93
Figure IV.24	*Variation des pressions colombienne et hydrodynamique en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21}W/m^2$,* λ=800 nm, *t=150 fs.*	94
Figure IV.25	*Variation des pressions colombienne et hydrodynamique en fonction du temps de l'agrégat du Na (5.10^6atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21}W/m^2$,* λ=800 nm, *t=150 fs.*	95

Liste des tableaux

Tableau	*Titre*	*page*
	Chapitre I	
Tableau I.1	*Distance interatomique (en Angström) du dimère (X2) et du métal massif (X∞).*	18
	Chapitre II	
Tableau II.1	*Qualificatifs d'une impulsion en fonction de sa durée.*	21

SOMMAIRE

Introduction générale …… 1

CHAPITRE I : Le symbole du monde nanométrique l'agrégat

I.1. Introduction…….... 4
I.2. Bref historique…….….. 4
I.3. Classification des agrégats……..... 8
I.3.1. Classification des agrégats selon leur taille……..... 8
I.3.2. Classification des agrégats selon leurs liaisons chimiques ……..... 10
I.4. Les agrégats organiques…….…… 12
I.4.1. Les fullerène…….....….. 12
I.4.2. Les nanotubes …… 13
I.5. Les agrégats métalliques …… 14
I.5.1. Les nombres magiques…….. 16
I.5.2. Quelques propriétés particulières des agrégats métalliques…… 18
I.5.2.1. Propriété physico-chimique……... 18
I.5.2.2. Propriétés magnétiques…….. 19
I.5.2.3. Propriétés optique……...……... 19
I.6. Conclusion…….. 20

CHAPITRE II : Interaction laser femtoseconde-agrégat métallique

II.1. Introduction…….. 21
II.2. Historique …… 22
Premiers Résultats……... 22
II.3. Laser femtoseconde …….. 23
II.3.1. Principe d'une chaine laser femtoseconde…… 24
II.3.2. Notion sur les impulsions laser ultra-brèves …… 26
II.3.3. Propagation d'une impulsion laser dans un plasma …….. 28
II.4. Interaction laser-matière en régime femtoseconde ……... 29
II.4.1. Interaction laser femtoseconde avec les métaux……... 30
II.4.2. Interaction laser-agrégats métalliques…….. 31

II.4.2.1. La réponse optique…… **31**
II.4.2.2. Modèle du Drude…… **32**
II.4.2.3. Epaisseur de peau……... **32**
II.4.2.4. Plasmon…….. **32**
II.4.2.5. Plasmon de surface ……... **33**
II.4.2.6. Collision électrons-atomes assisté par laser …….. **34**
II.4.2.7. Absorption collisionnelle-Bremsstrahlung inverse…… **35**
II.4.2.8. Les différents mécanismes d'ionisation par effet de champ….. **35**
II.4.2.9. L'émission thermique……. **38**
II.4.2.10. L'émission directe…… **39**
II.4.2.11. Résultats expérimentaux…….. **39**
a) Mise en évidence de l'émission X : mesures spectrales….. **39**
b) Emission de rayonnement dans l'extrême ultraviolet……. **40**
c) Émission des particules …… **41**

II.5. Conclusion …… **44**

CHAPITRE III : Modélisation du modèle nanoplasma

III.1. Introduction ……... **45**
III.2. Modélisation de l'interaction…… **45**
III.2.1. Modèle CEMM (Cohérent Électron Motion Model) …….. **45**
III.2.2. Modèle d'ionisation classique (Ionisation Ignition Model) …… **46**
III.2.3. Modèle nanoplasma……. **47**
III.2.4. Autres Modèles…… **48**
III.3. Présentation du modèle nanoplasma …… **50**
III.3.1. Principe du modèle…….. **50**
III.3.2. Les hypothèses……. **51**
III.4. Mécanisme nanoplasma …… **53**
III.4.1. Champ électrique interne……... **53**
III.4.1.1. Le champ laser …….. **53**
III.4.1.2. Le champ à l'intérieur de l'agrégat…… **54**
III.4.1.3. Mise en évidence d'une résonance……. **55**
III.4.2. Fréquence de collisions électrons-ions……... **56**
III.4.2.1. De la nécessité d'un calcule adapté à l'interaction laser agrégat…… **56**

III.4.2.2. Fréquence de collision pour l'interaction laser-agrégat……. **58**

III.4.3. Ionisation collisionelle……..... **60**

III.4.3.1. Amélioration du calcul du taux d'ionisation …… **61**

III.4.3.2. Taux d'ionisation collisionnel : forme analytique …… **62**

III.4.4. Émission électronique …… **62**

III.4.5. Expansion de l'agrégat ……... **64**

III.4.6. Température électronique…….. **65**

III.4.6.1. Terme de gain d'énergie …… **65**

III.4.6.2. Terme de perte d'énergie …….. **67**

III.4.6.3. Termes supplémentaire…….. **67**

III.4.7. Implémentation numérique ……... **68**

III.4.8. Méthodologie de travail…….. **70**

III.5. Conclusion …….. **72**

CHAPITRE IV: Présentation des résultats et discussions

IV.1. Introduction …… **73**

IV.2. Scénario de la dynamique de l'interaction……... **73**

IV.3. Résultats et discussions …….. **74**

IV.3.1. Effet de la variation de l'intensité du laser…… **79**

IV.3.2. Effet de la longueur d'onde …… **85**

IV.3.3. Effet de nombre d'atome……. **89**

IV.3.3.1. Effet du nombre d'atome sur le champ interne et externe…. **89**

IV.3.3.2. Effet du nombre d'atome sur les énergies totales…….. **91**

IV.3.3.3. Effet du nombre d'atome sur la densité électronique normalisé par la densité critique…… **92**

IV.3.3.4. Effet du nombre d'atomes sur les pressions colombienne et hydrodynamique……. **94**

IV.4. Conclusion…… **95**

Conclusion générale …… **96**

Références bibliographiques …… **98**

Introduction générale

Introduction générale

Depuis une dizaine d'années, l'intérêt consacré aux agrégats par la communauté scientifique n'a arrêté de croitre. L'investigation de systèmes de plus en plus complexe a pu être réalisée grâce au développement des techniques aussi bien expérimentales que théoriques en physique. Le terme d'agrégat demeure assez vague généralement, il s'agit des particules constituées d'un nombre fini d'atomes ou bien de molécules qui sont liés par des liaisons de divers nature. Ils sont caractérisés par une densité locale élevée (de l'ordre de celle d'un solide) alors que la densité moyenne est faible se rapprochant alors de celle d'une cible gazeuse. Dans ces systèmes, chaque atome ou molécule compte, en particulier dans la gamme des petites tailles. L'étude des agrégats put être effectuée lorsqu'ils sont libre, déposés ou en matrice. Le faite de les étudier libre permet de s'affranchir des effets de l'environnement et donc d'étudier précisément leur caractéristiques intrinsèques [1].

Les développements technologiques dans le domaine des impulsions laser ultra-courtes et ultra-intenses ont permis d'atteindre de nouveaux régimes d'interaction avec la matière qui jusqu'à présent été inaccessibles. Dans le but de produire des sources secondaires brèves et énergétiques de rayonnement ou de particules différentes plusieurs recherches sur des cibles de différentes échelles (de l'atome au solide) ont été réalisées. À titre d'exemple, lorsqu'un atome est irradié par une impulsion laser, l'électron peut alors être ionisé, oscillant dans le champ laser, se recombiner en émettant un photon d'une fréquence multiple à la fréquence laser (Rayonnement harmonique) [2]. La durée d'émission de ce rayonnement est alors sub-femtoseconde, les photons émis ont une énergie de quelques dizaines d'électronvolts (dans la gamme spectrale de l'ultra-violet).

Pour obtenir des photons plus énergétiques (quelques kilo-électronvolts), l'interaction d'une impulsion laser avec une cible solide est alors plus fructueuse [3]. Les atomes de la cible sont ionisés par le champ électromagnétique, créant ainsi une population d'électrons libres. Les électrons les plus énergétiques ont la possibilité de se propager dans le corps de la cible et ainsi induire l'émission de photon X, soit en générant des lacunes en couche interne et cela par collision avec les atomes ou ions environnants (l'émission provient alors de désexcitation radiatives), soit par bremsstrahlung (Rayonnement de freinage associé à la décélération d'électrons entrant en collision avec un ion ou un atome) la durée de l'émission X est

dépendante de l'expansion hydrodynamique du plasma, les temps caractéristiques varient du domaine sub-picoseconde au picoseconde [4].
Dans le cadre de l'interaction laser-matière d'autres cibles ont plus récemment été envisagées parmi les quelles on trouve les poudres [5], les gouttelettes [6] et les agrégats.
Pour cette dernière catégorie de cible, de nombreuses expériences ont été réalisées mettant en évidence des propriétés singulière. Exemple, des effets « magiques » comme les résonances géantes découvertes par les mesures d'absorption au sein d'agrégats de lithium, qui résulte des oscillations collectives des électrons libres à l'intérieur de l'agrégat [7]. Pour un jet d'agrégat de Xénon, une absorption de plus de 90 % de l'énergie laser a été mesurée [8]. Leurs petites tailles alliées à une forte densité atomique par agrégat leur donnent divers avantages; l'absorption de l'énergie laser peut être très élevée (contrairement aux gazes), et les pertes par conduction thermique sont négligeables (contrairement aux solides). De plus, peu de débris résulte de l'irradiation de l'agrégat, un fort taux de réception est enregistré grâce au renouvellement systématique des cibles dans le jet. Différentes travaux ont prouvés que l'interaction laser agrégat permet de générer des photons X [9] ou des particules chargée très énergétiques [10], ou bien même de provoquer des réactions de fusion nucléaire [11].

Cette thèse contient quatre chapitres répartis de la façon suivante :

Après un bref rappel historique sur la physique des agrégats et les différentes théories établies sur ces petits objets de faible dimension, dans le premier chapitre, on a cité les différent classes des agrégats, puis on a parlé de la différence entre les agrégats métalliques et les agrégats organiques, ensuite on cité les divers propriétés des agrégats métallique qui font l'objet de notre recherche.

Un aperçu des différents résultats obtenu précédemment sur l'étude des agrégats est illustré au début du 2^{éme} chapitre. Une étude détaillée sur l'interaction du laser avec les agrégats métallique est menés après avoir parlé des différentes notions portant sur les lasers femtosecondes.

Le chapitre trois donne une vue générale sur le modèle nano-plasma utilisé dans le cadre de notre étude après l'avoir modifié et adapter a nos besoin. On a cité quelques notions sur la modélisation de l'interaction laser intense-agrégats (atomiques ou métalliques), puis on a établie une étude bien détaillée sur le modèle nanoplasma et les différents mécanismes qui le caractérisent.

Dans le quatrième et dernier chapitre on a présenté les différents résultats qu'on a obtenus sur l'effet de la variation de l'intensité laser, la longueur d'onde du laser ainsi que le nombre d'atome composant l'agrégat métalliques sur les divers paramètres physiques du nanoplasma. Enfin on termine notre thèse par une conclusion générale.

Enfin on a terminé par une conclusion générale sur les différents résultats obtenus.

Chapitre 1

Le symbole du monde nanométrique : l'agrégat

I.1. Introduction

En physique, l'agrégat est considéré comme étant le rassemblement de deux atomes ou plus, ce petit objet a des dimensions nanométrique, la nature des atomes composant ce dernier et le type de liaisons chimiques entre eux laisse entrevoir des structures diverses et variés.
La large gamme de tailles, de structures et de natures possibles permet des variations importantes dans les propriétés du système, ce qui rend cette discipline très riche et son exploration extrêmement intéressante.
Ces dix dernières années, les scientifiques se sont intéressés de plus en plus à l'étude des agrégats. L'investigation de systèmes plus complexes est devenue possible grâce aux développements techniques expérimentaux et théoriques.
Dans ce chapitre, nous allons revoir les notions générales qui définissent l'agrégat [12, 13].

I.2. Bref Historique

La physique des agrégats vise le domaine qui se situe à la frontière encore non précises entre la physique atomique et la physique de la matière condensée. En 1908, Gustav Mie a établie une théorie sur la diffusion de la lumière par de « petites particules » d'or sphérique et a mis en évidence le phénomène de résonance plasmon [14]. Cette propriété qui caractérise les métaux définit la réponse collective des électrons de valence lorsqu'ils sont excités à une fréquence donnée, qui d'habitude se situe dans le spectre visible. À titre d'exemple, les nanoparticules métalliques qu'intègrent les artisans pour fabriquer des vitraux de différentes couleurs. C'est au cour des années 80 que les physiciens s'approfondi dans l'étude des agrégats; et cela en commençant par la production des agrégats libres. Ensuite, vient la découverte de tailles privilégiées dans le spectre d'abondance d'agrégat de sodium [15]. C'est grâce à un modèle théorique qu'utilise un jellium sphérique [15, 16] comme potentiel ionique subi par les électrons de valence, que ce phénomène peut-être expliqué par le modèle et s'est plus affiné (modèle de clemenger. Nilson [17]) pour mieux tenir compte de la forme de l'agrégat, qui n'est pas parfaitement sphérique (surtout pour les plus petits agrégats), et de ce fait, reproduire les résultats expérimentaux d'une bonne manière. Ensuite, cette interprétation en termes de couche électroniques à été validé par les mesures de polarisabilité [18] et de potentiel d'ionisation [19].
En 1985, on identifia l'agrégat C_{60} qui possède une structure sous forme d'une cage de carbone constituée de pentagones et hexagones à l'image d'un ballon de football presque

sphérique [20, 21]. Possédant une grande stabilité, il a une remarquable géométrie et en plus il présente plus d'une centaine d'opérations de symétrie différente. La découverte de C_{60} ainsi que celle des autres fullerènes ($C_{40}, C_{30}, \ldots$etc) et aussi les nanotubes de carbone [22, 23] a donnée une autre poussé à la chimie et la physique du carbone.

C'est en 1999, qu'un nouveau phénomène a été mis en évidence par la réalisation d'un spectre de masse pour des agrégats de sodium allant jusqu'à une taille de 22000 atomes : la structure en couche électronique est relayée par une structure en couche atomique lorsque la taille dépasse environ 1500 atomes [24-28]. Les couches atomiques apparaissent pour tous les types d'agrégats contrairement aux couches électroniques qui n'existent que dans les agrégats métalliques.

En 1991, un nouvel effet de super couches électroniques [29] dans le cas de gros agrégats de sodium, apparait grâce aux nouvelles mesures prises. Les agrégats de sodium ont été retrouvés théoriquement grasse aux calculs à base d'un jellium sphérique avec les équations de Khon-Sham dans l'approximation de la densité locale (LDA) [30], qui concerne la modulation de grande période de l'effet de couche électroniques dans le spectre d'abondance. Ce même phénomène été déjà trouvé théoriquement en 1974 dans l'étude de modes propres dans une cavité dont les parois sont réfléchissantes [31].

La physique des agrégats a été posée comme étant une discipline à part entière même si elle est hybride dans les nombreux résultats originaux obtenus, dans le cas des agrégats métalliques ou autres. Ses parentés touchent la physique atomique et moléculaire, la physique du solide, la chimie et la physique nucléaire; elle requiert pourtant des méthodes propres, à un niveau expérimental que théorique. D'un point de vu fondamentale les agrégats jouent un rôle important puisqu'ils font le pont entre la molécule et l'état solide, et leur taille peut varier d'autant ainsi qu'ils abordent de front le problème à N corps quantique [30, 32, 33]. Leur intérêt recouvre plusieurs domaines comme l'astrophysique, la chimie ou la science des matériaux [34-37]. A titre d'exemple, les agrégats de carbone seulement ont un rôle important dans les mécanismes de formation et les propriétés de la poussière cosmique [38, 39]. Pour la chimie, leur propriété la plus importante est leur taille, sur la quelle il est possible de jouer et ainsi permettre de choisir le rapport surface volume. Ils sont considérés comme étant d'excellents catalyseurs et ont un rôle fondamentale dans les cinétiques de réaction [40], comme exemple typique on cite la photographie. Grace à la découverte des fullerènes et des

nanotubes de carbone, la science des matériaux a ouvert les portes sur divers applications [41, 42] y compris industrielles.

Exemple courants de l'utilisation de nanoparticules

Actuellement, l'utilisation des nanoparticules, par exemple en médecine, représente un vaste sujet très porteur. En 2003, quelques patients de l'hôpital de la charité de Berlin, atteint de différents cancers, ont reçu des injections de nanoparticules d'oxyde de fer magnétiques de sept nanomètre de diamètre. Dans ce cas, la formation des agrégats s'effectue par synthèse chimique. La thérapie qui reste encore expérimentale, se déroule en trois étapes. La première étape est l'injection des agrégats directement dans les tumeurs localisés dans le cerveau, la prostate ou l'épaule. La deuxième étape consiste à faire pénètre les nano-cristaux dans les cellules. Enfin, dans la troisième et dernière étape, les patients sont soumis à un champ magnétique oscillant qui fait vibrer les nanoparticules; cette vibration permet d'élever la température des tissus cibles au-delà de 43°C [12]. Ce qui conduit à la destruction des cellules cancéreuses. Ici on utilise le principe d'hyperthermie et cela en échauffent les tissus par retournement des particules 100000 fois par second, ce principe à été développé par K. Maier-Hauff et A. Jordan [43-47]. Ce dernier est le directeur de Magforce, société berlinoise qu'il a fondée en 2005 pour promouvoir sa technologie.

L'utilisation des nanoparticules a des avantages bien évidents. Leur diamètre, qui est très inférieur à 100 nm, leur permet d'être incorporées par des cellules de taille environ 1000 fois supérieure comme n'importe quelles grosses molécules biologiques, et ainsi d'être activées très localement au plus prés de leurs cibles. Bien d'autres sociétés développent des concepts sur le même principe, comme Triton Biosystème, Nanosectra, Nanobiotics.

Il est aussi possible d'utiliser les agrégats dans le but d'amener un médicament, souvent anticancéreux au plus prés de la cible on l'appelle la vectorisation classique: le principe actif est protégé à l'intérieur de la nanoparticule mais trouve mieux sa cible. À titre d'exemple la société Bioalliance pharma utilise ce concept sous le nom de Transdrug et mette la doxorubicine dans une pelote de polymère de 200 nm de diamètre [48-51].

À Düsseldorf en Allemagne, le professeur Dreja et son équipe cherchent à aider la société Henkel à résoudre des problèmes bien « terre à terre » de salissures qui adhérent au surface vitrées. Le but de leurs recherches est de faciliter le nettoyage des vitres avec des produits garants d'une plus grande efficacité avec une protection de longue durée contre la saleté.

En 2001, l'équipe de Henkel découvrait un procédé pour la fabrication des nanoparticules de silice, d'à peine 9 à 12 nanomètre de diamètre. Ces particules, qui peuvent former une couche protectrice d'une longue durée sur une vitre, ne sont pas hydrofugées comme tout autre produit, au contraire, elle « aiment » l'eau; l'avantage c'est que sur une telle surface au lieu de se perler ou former des gouttes, l'eau s'étale largement sur la surface vitrée [52, 53]. En effet, le faite de modifier la réguosité de surface, les particules permettent à l'eau de mieux « mouiller » la surface, cette propriété a permis de mètre fin à la trace laissé par une goutte qui descend le long de la vitre. De plus, garce au nanobouclier, les buées ne se forme plus sur le verre. En fusant un test comparatif direct avec des nettoyants conventionnels, il s'est avéré que juste un quart des salissures demeure sur les vitres munies d'une couche protectrice et cet effet peut encore être constaté partiellement plusieurs mois après le nettoyage.

L'utilisation des nanoparticules peut aussi surgir dans notre vie quotidienne, en prend comme exemple les deux applications développées en France, qui concernent le pneumatique et les crème solaire. Le premier qui a intégré des nanoparticules de silice de quarante nanomètre de diamètre aux caoutchoucs des pneus été Michelin [54]. Grace à ce renfort, pourtant de très petite échelle et très dispersé à permis de crée le « pneu vert », comme l'appelé Mechelin. Ce pneu est pris comme exemple d'application des nanosilices qui permet d'en augmenter la résistance en évitant la perte d'adhérence. Selon Michelin, ces pneus permettant d'économiser un tiers de litre aux cent kilomètres en réduisant les frottements sur la route.

Des particules « miracles » sont aussi couramment utilisées en cosmétique. Les agrégats d'oxyde de Titane d'une trentaine de nanomètres sont mélangés aux crèmes solaires pour absorber les UV. Les particules doivent être petites pour assurer la transparence de la crème. Les oxydes de titane sont en effet des pigments blancs, à l'effet esthétique désastreux sur la peau. Une émission de lumière activant la synthèse de radicaux libres néfastes à nos cellules résulte de l'absorption des UV par des nanocristaux d'oxyde de titane. Donc, les particules mises au point sont plus complexes et recouvertes de deux écorces successives: deux petites coquilles, l'une en silice et une autre en alumine qui bloquent ce rayonnement. Ce procédé est développé par l'Oréal en partenariat avec Rhdia.

Les quelques exemple vu précédemment démontrent la faisabilité de l'industrialisation de technologies basées sur l'utilisation des agrégats divers et varier, et mettant en évidence le formidable potentiel des nanoparticules et sans doute leur prodigieux développement dans la prochaine décennie.

Il est important d'étudier et de bien comprendre les propriétés physico-chimiques de ces objets de dimension nanométrique pour bien maitriser ces nouvelles technologies.

I.3. Classification des agrégats

L'agrégat est un mot qui désigne un édifice constitué d'atomes, leurs nombres varient entre deux et quelque millier d'atomes. La (fig. I.1) illustre un agrégat constitué d'atomes d'argent (a) et de carbone C_{60} (b), les formes et les compacités de ces deux agrégat ce diffèrent totalement.

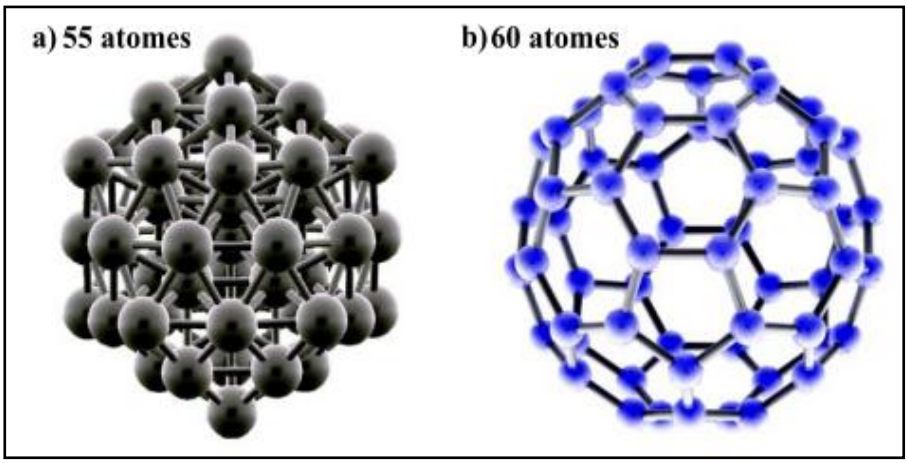


Figure I.1 *: Simulation de l'arrangement atomique de petits agrégats. A) agrégat en forme d'icosaèdre régulier composé de 55 atomes d'argent. B) agrégat de type "cage" formé par 60 atomes de carbone [12].*

Le nombre « n » ainsi que la nature chimique des atomes présent dans l'agrégat définissent le type de structure de l'édifice; raison pour laquelle les propriétés intrinsèques de ces nano grains sont principalement dépendant de la nature des éléments chimiques qui les composent et de leurs tailles. De ce fait, on peut classer ces particules en se basant sur ces deux caractéristiques [12].

I.3.1. Classification des agrégats selon leurs tailles

La particularité des agrégats est leurs petites tailles, leurs molécules et leurs réseaux cristallins sont complètement différents malgré leurs positions intermédiaires. Une molécule est connue pour avoir une structure et une composition bien déterminée. Ce type de système contient un nombre réduit d'isomère, d'un autre coté, du point de vue énergétique, les agrégats comporte souvent un nombre suffisant d'isomère disposé les uns à coté des autres, et ce nombre augmente très rapidement selon le nombre de composant. Si on prend l'exemple d'un agrégat

assez petit comme l'Ar_{13} [55], on trouvera une centaine d'isomère. Le potentiel interatomique utilisé pour les calculs détermine le nombre exact, alors qu'il existe moins d'une dizaine pour l'Ar_{18}. Ce qui rend difficile la détermination de la structure la plus stable.

Expérimentalement; la production des agrégats à une température précise, leurs permet de passer par divers variétés de configuration et cela est due à l'agitation thermique, d'où on accédera à un grand nombre d'isomère. D'un point de vue technique, la difficulté rencontré pour la détermination théorique de l'état fondamental est uniquement du à la surface d'énergie potentielle qui est très plate [13].

Il existe aussi bien d'autres caractéristiques qui distinguent l'agrégat du réseau [56]. La différence la plus évidente est celle qui apparait dans le spectre des énergies électroniques. Dans le cas d'un système fini, on trouve que les niveaux sont discrets contrairement au solide fini. Les niveaux sont tellement proches dans le cas d'un continuum et c'est là où la théorie des bandes intervient. L'augmentation de la taille des agrégats permet d'entrevoir la transformation du spectre discret à un spectre continu. L'ajout de chaque atome fait gagner un niveau au spectre, puis ces niveaux ce rapproches et se ressert pour enfin constituer une structure de bande correspondant au réseau cristallin [33]. Ce problème peut être traité différemment si on se penche sur le nombre d'atome interne. En effet, tellement que certains agrégats sont grands, il en devient possible de dégager une zone de surface, cette dernière doit être assez petite pour que l'on puisse comparer et faire la classification des agrégats selon leurs tailles [57]. La figure I.2 illustre ce classement.

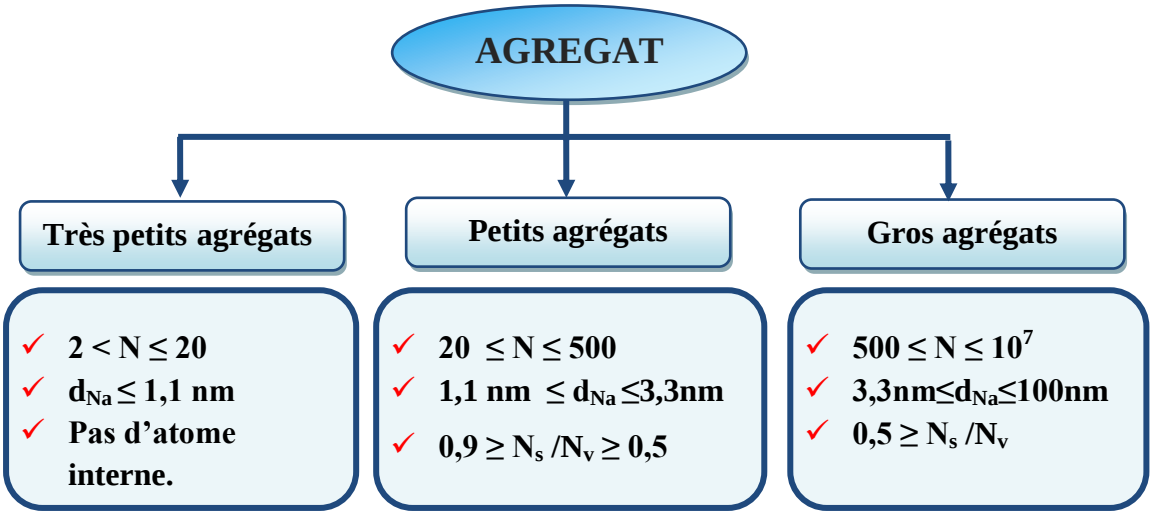


Figure I.2 : *Classification des agrégats suivant le nombre de composants N. d_{Na} correspond au diamètre d'un agrégat de sodium dans la gamme de taille considérée, et N_S /N_V est le rapport du nombre d'atomes en surface et du nombre d'atomes internes. D'après [57].*

On constate clairement qu'il est possible de ranger les agrégats selon 3 catégories; tous dépond du nombre de composant (de 2 jusqu'à 10^7 atomes). Le calcul du rapport du nombre d'atomes en surface, N_s, et du nombre d'atomes internes, N_v, donne des valeurs inferieur à « 1 ». Ce rapport croit lorsque l'agrégat est petit, ce même rapport est égale à 0 lorsque l'agrégat s'approche du réseau [58, 59].

I.3.2. Classification des agrégats selon leurs liaisons chimiques

Les éléments qui composent l'agrégat jouent un rôle important dans les caractéristiques de ce dernier. En se basant sur le type de liaison qui relie les atomes, on peut en sortir quatre catégories d'agrégats:

- **Agrégats formés par des liaisons ioniques**

Dans ce type d'agrégats, les électrons sont localisés sur les atomes ou les molécules liés par des forces colombiennes entre deux charges de signes opposées.
Ces dernières années, les agrégats constitués par des liaisons ioniques font l'objet de plusieurs recherches surtout dans l'objectif de potentielles applications en photographie (exemple agrégat d'AgBr). L'exemple le plus simple est celui de l'agrégat contenant une espèce alcaline (donneur d'électrons) et un autre halogène (accepteurs d'électron), tel que le $(Na\ cl)_n$, $Na_n F_{n-1}$ [60, 61, 62] et le $Na_n I_{n-1}$ [63].

- **Agrégats covalents**

Les atomes sont liés entre eux par des liaisons chimiques dans lesquelles chacun des atomes met en commun un ou plusieurs électrons de ses couches externes, ces électrons restant localisés au niveau de la liaison. L'exemple le plus parfait d'un agrégat covalent est celui des fullerènes. En générale, tout agrégat constitué d'atomes faisant partie du groupe du carbone, possède des liaisons covalentes, exemple : l'agrégat de Silicium Si_n [64, 65].

- **Agrégats de Van Der Waals**

Les composants sont liés par des forces dispersives ou dipolaires. Les électrons sont localisés sur les atomes dont les propriétés sont peu perturbées par les voisins. Ces interactions sont faibles et de courtes portées. Les agrégats de gaz rares font partie de cette catégorie (Ar_n par exemple). Il est aussi possible d'écrire ce type de système avec un potentiel atome-atome effectif [66, 67].

Agrégats métalliques

Dans le cas des agrégats métalliques, on observe la délocalisation des électrons sur toute la structure. Ils possèdent une mobilité élevée et ont un comportement presque identique à celui d'un gaz électronique dans un puits de potentiel. Il en résulte différentes propriétés, telle que la structure en couche électronique (responsable des nombres magiques) et la résonance plasmon de Mie. A cause de leurs grandes simplicités, les agrégats alcalins furent l'objet de diverse étude par le passé [68-70].

La figure I.3 regroupe quelques exemples de chacun de ces types d'agrégats En plus des ordres de grandeurs de l'énergie de liaison correspondantes [71], cette classification n'est pas considérée comme étant rigide; elle donne juste un ordre d'idée.

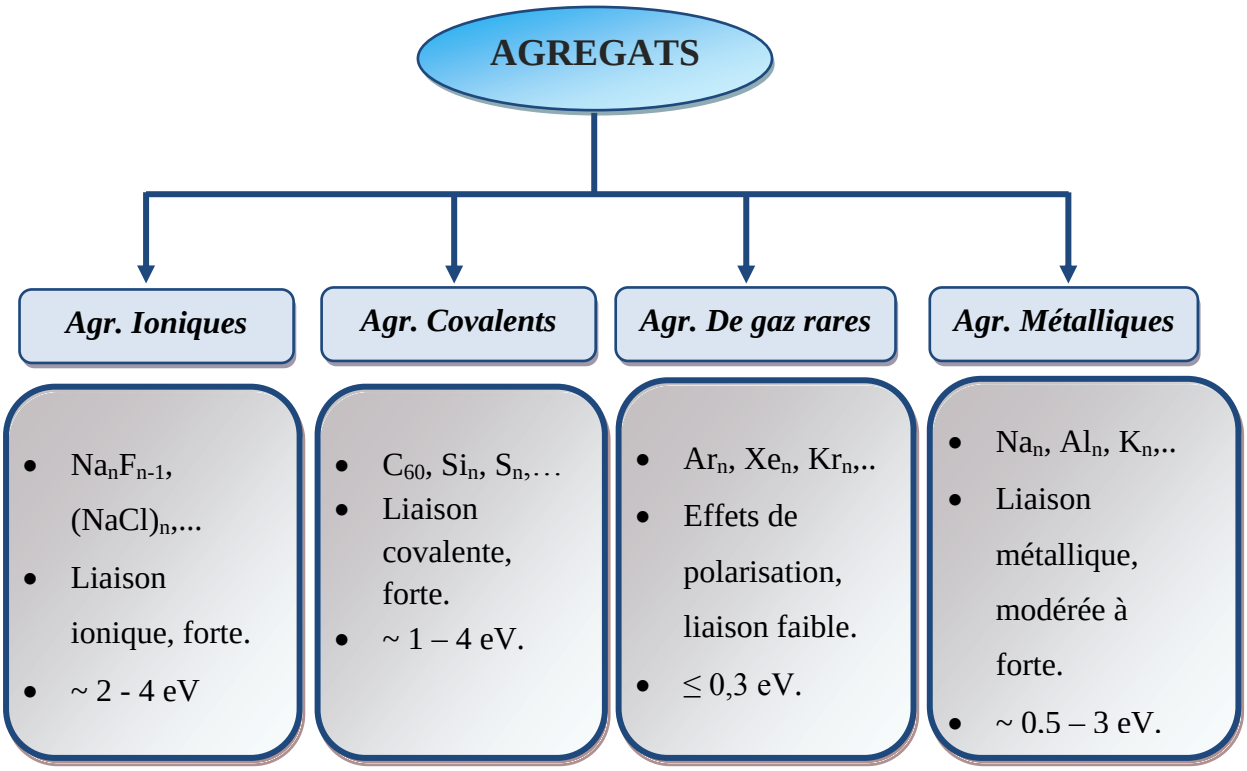


Figure I.3 : *Classification des agrégats suivant la nature de la liaison interatomique, avec des exemples et des énergies de liaison typiques. D'après [71].*

Les agrégats ioniques et covalents sont les plus fortement liés, suivi des agrégats métalliques puis en dernier, on trouve les agrégats de van der Waals. Les agrégats métalliques sont considérés comme étant une classe intermédiaire entre les agrégats les plus fortement liés, ioniques et les agrégats les plus faibles liés, moléculaires. Peut importe le type d'agrégat,

l'énergie de liaisons est toujours de l'ordre de l'eV, et les longueurs de liaison typiques sont de l'ordre de quelques A° [71].

I.4. Les agrégats organiques

Les agrégats organiques sont composés d'atomes liés entre eux par une seule et même liaison: la liaison covalente. Cette dernière est caractérisée par la mise en commun de plusieurs électrons qui se trouvent alors localisé entre les atomes sur une liaison très fortement directive. Le degré d'hybridation des orbitales de la liaison permet de déterminer les paramètres géométriques de la liaison covalente, surtout les angles entre les différentes liaisons. Les propriétés électroniques des agrégats organiques laissent entrevoir une localisation précise des électrons et une géométrie bien définie associée à une énergie de liaison importante. Ces géométries sont la plus part du temps des molécules cages appelées des fullerènes [12].

I.4.1. Les fullerènes

Lors de leur expérience, qui consiste à pulvériser une cible de graphite à l'aide d'un laser Nd-Yag, R E. Smalley et al [72, 73, 74] trouvèrent de nouvelles combinaisons moléculaires qui ont été étudiées par spectrométrie de masse. Ils étaient surprit, car ils ont constaté la présence systématique d'une molécule pouvant correspondre 60 atomes de carbone. La synthèse systématique et l'abondance de cette molécule conduisent à une grande stabilité de cette dernière. Les divers efforts et les différentes maquettes en papier ont permis de déterminer une hypothèse novatrice: cette molécule était uniquement composée de carbone et possédé une géométrie d'un icosaèdre (fig. I.4). Cette molécules fut appelé « Buckminsterfullerene » en hommage au dôme géodésique réalisé par l'architecte Buckminster Fuller pour une exposition en 1967 à Montréal. Une nouvelle méthode de production simple de molécules de carbone à été mise au point par W. Krätschmer et al [75]. Entre deux électrodes de graphite se trouvant dans une atmosphère d'hélium (~100 torr), un arc électrique est généré ensuite, pour obtenir une poudre principalement constituée de C_{60}. La suie qui résulte de l'évaporation des électrodes est récoltée puis purifié via divers procédés chimiques. La présence d'une structure sphérique avec un réseau hexagonal a pu être mise en évidence grâce à des études effectuées par diffraction d'électrons et de rayons X. La preuve attendue était- là, le C_{60} est une molécule sphérique basé sur des structures hexagonales et pentagonales. Elle a la même forme qu'un ballon de football.

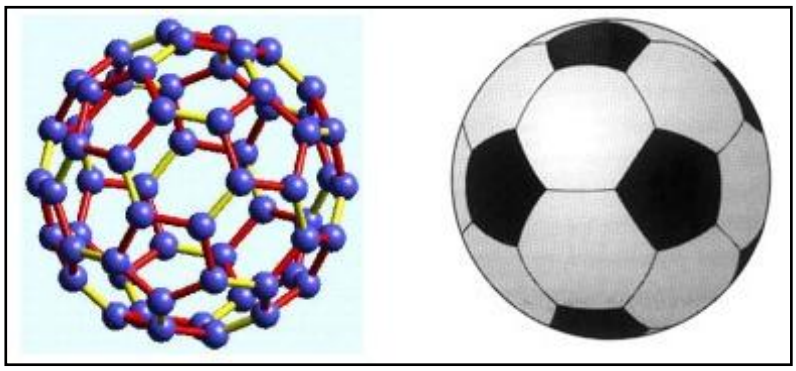


***Figure I.4**: Structure d'un agrégat composé de 60 atomes de carbone (C_{60}) identifiée à la forme d'un ballon de football [75].*

Actuellement, divers autres formes ont été trouvées. Le C_{70} n'est pas aussi sphérique que le C_{60} Il a été démontré que le faite d'augmenter encore le nombre d'atomes de carbone, fait augmenter cette non sphéricité jusqu'à obtenir de véritables nanotubes, et même de véritables « oignons » moléculaires visibles en microscopie électronique.

I.4.2. Les nanotubes

En 1991, S. Lijima à découvert pour la première fois les nanotubes de carbone, qui se trouvent êtres apparentés aux fullerènes [22]. Le principe au départ était de synthétiser par arc électrique des fullerènes de C_{60}. L'observation du résidu déposé lors de ce processus lui a permis de constater la présence de nanotubes, ils sont sous forme de longs cylindres, de quelques nanomètre de diamètre et pouvant atteindre plusieurs micromètres de long, ils sont composés de minuscules feuilles de graphite et ayant aux deux extrémités deux demi-sphères. On trouve parmi eux les SWNT (Single Wall Nanotube) qui possèdent une forme d'un cylindre coaxial qui peut contenir jusqu'à 50 feuilles de graphite. Ces structures sont caractérisées par des propriétés remarquables. Elles ont un comportement des semi-conducteurs et elles peuvent transporter des densités de courant très importantes. La résistance à la rupture des nanotubes est de 50 GPa, c'est-à-dire 10 fois plus supérieur que la résistance de l'acier. Des particules d'autres matériaux sont incérées à l'intérieur des nanotubes pour les fonctionnaliser car ils sont creux. Pour la réalisation des supports magnétiques, l'insertion d'éléments métalliques comme le cobalt, le fer ou le nickel est la plus intéressantes. D'un autre coté, leur capacité à se déformer laisse envisager la réalisation d'actionneurs électromagnétiques, et même des muscles artificiels. Ils ont aussi une grande conductivité thermique (1750-5800 W/Km) qui est supérieur à celle du diamant (800-1200 W/Km), ce qui

donne l'opportunité de réaliser des composites destinés à évacuer la chaleur, enfin lorsque les nanotubes sont exposés à un champ électrique, leur extrémités leur confèrent un effet de « pointe ». Ceci peut être pris en compte pour l'obtention d'une émission froide d'électrons par effet de champ; ils demandent des tensions 5 à 10 fois plus faible que les autres émetteurs. Ces propriétés ont déjà été prises en considération par les industriels qui ont réussi à établir des prototypes d'afficheurs à émission de champ [76].

De nos jours, Divers recherches tentent de synthétiser les nanotubes en grande quantité pour une industrie de plus en plus gourmande. Dans le cas des fullerènes C_n, ils ont effectué des essais de substitution d'atomes de carbone par des atomes d'autres éléments chimiques [77, 78] (Silicium, carbure de silicium) et l'introduction d'atomes à l'intérieur de ces molécules cages.

I.5. Les agrégats métalliques

Dans un métal, la grandeur du libre parcours moyen des électrons de valence et la faible température de fusion rendent ce type de matériaux particulier, le parfait exemple est celui des alcalin et plus précisément le sodium. Un gaz électronique quasi-libre est formé par les électrons, ce gaz présente des conditions aux bords fixées par le font ionique puisque dans les deux cas il s'agit d'un gaz de fermions confinés (via le champ des ions par l'agrégat, et via le champ auto-cohérent dans le cas de noyau). L'analogie avec la physique nucléaire est immédiate plus exactement, l'apparition de couches est due au confinement du nuage électronique. Comme une conséquence directe, on prend l'effet Jahn taller: Les agrégats à couche fermé sont de forme sphérique, et ceux qui possèdent une couche ouverte sont de forme soit prolates (le nombre d'atomes est juste au dessous d'un nombre magique) ou alors triaxiaux (le nombre d'atomes se situe approximativement a mi-couche) [79].

Une des conséquences les plus importantes résultantes de la mobilité du nuage électronique est le fort couplage à la lumière, entrainant un comportement résonnant prononcé portant le nom de résonance plasmon de Mie. C'est un phénomène collectif d'oscillation des électrons de valence par rapport au fond ionique, comme réponse à une excitation (en physique, elle est mieux connu comme étant la résonance dipolaire géante [80, 81]). Ce mouvement est d'une durée limitée, puis à la fin il perd son caractère collectif, d'une part, c'est causé par l'amortissement de landau [82], et d'autre par, c'est due à l'émission électronique directe. Dans le cas d'un petit agrégat, c'est beaucoup plus causé par l'émission que par les phénomènes théoriques. Une importante émission électronique est causé par la forte intensité

de l'excitant entrainant ainsi l'explosion coulombienne de l'agrégat, par contre l'intensité de l'excitation n'influe pas sur la fréquence du plasmon. C'est pour cela, les chercheurs s'entraide du processus d'excitation pour pouvoir exploré la dynamique électronique, comme exemple on prend l'excitation par un laser femtoseconde ou bien par la collision avec un ion fortement chargé [33].

Les liaisons des agrégats de métaux sont connu pour être très délocalisées contrairement aux éléments covalents et aussi, elles peuvent faire intervenir un grand nombre de liaisons. Leurs géométrie sont beaucoup plus gouvernées par la recherche du maximale que peut atteindre la compacité maximale de la structure. Donc, cela veut dire que ces agrégats n'auront pas le même type de structure vu précédemment, mais plutôt une structure de type sphères denses.

Si on considère l'édifice comme étant une sphère dense, il est possible d'étudier la variation du nombre d'atomes composants l'agrégat en fonction du diamètre de ce dernier. Pour un agrégat de rayon R composé de n atomes, l'espace occupé par l'un des atomes (considéré comme sphérique de rayon R) peut-être évalué par le rayon atomique de Wigner Seitz r_s [12].

$$R = r_s.n^{(1/3)} \qquad \text{(I-1)}$$

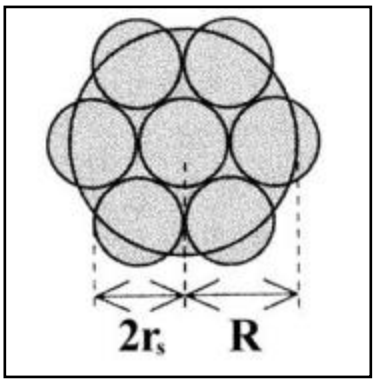


***Figure I.5**: Schéma d'un agrégat sphérique dense [12].*

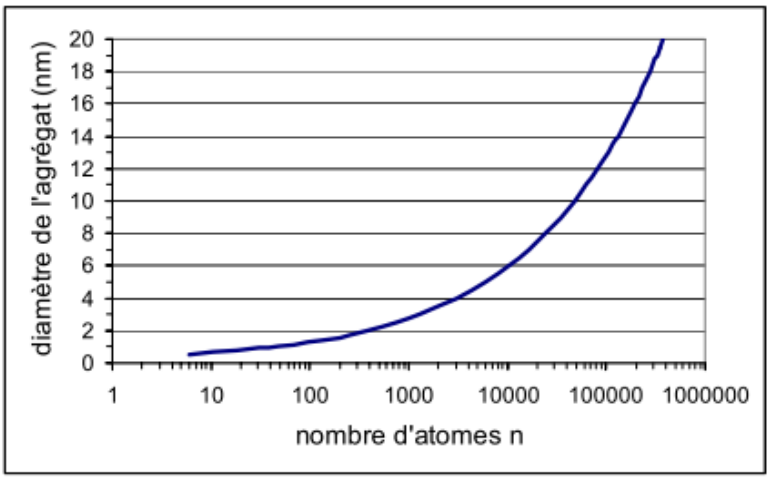


***Figure I.6** : Estimation de l'évolution du nombre d'atomes en fonction du diamètre d'un agrégat de cobalt (r_s vaut approximativement 0,1379 nm) d'après l'équation I-1[12].*

L'avantage de cette approche, bien qu'elle soit approximative, est sa simplicité ajouté au faite qu'elle donne une valeur proche de la réalité [12].

Le rapport C entre le nombre d'atomes présents à la surface et ceux présents en volume, est un paramètre très important qui doit être pris en compte.

$$c = \frac{N_s}{N_v} \qquad \text{(I-2)}$$

D'une façon générale, l'influence de la taille apparait dans le confinement des électrons, les propriétés magnétiques, optiques et électriques et on peut aussi constater cette effet sur les propriétés thermodynamiques et les transitions de phases.

I.5.1. Les nombres magiques

La caractérisation par spectrométrie de masse d'un faisceau d'agrégats obtenu par procédé physiques faits apparaitre des pics d'abondances qui correspondes à l'association d'un nombre bien déterminer d'atomes donc provoquant des discontinuités dans le spectre de masse (Ag [83, 84], Au [85], Cu [84, 85] , Na [86, 87] agrégat bimétallique $CuAg_n$, $Cu_n Al_m$, $Cu_n In_m$, $Ag_n Al_m$, $Ag_n In_m$, $Cu_n Pb_m$ [84]). Ces nombres particuliers qui réapparaissent pour différents types d'éléments, les auteurs les appels « les nombres magiques »

Un exemple relatif aux agrégats de cuivre, montrent que la stabilité diminue brutalement lors du passage n vers (n+1), lorsque n = 9, 21, 35, 41, 59… Du fait de l'ionisation positive des Cu_n^+ détectés, les nombres $\mathbf{n_e}$ d'électron **s** de valence correspondant sont: n_e = 8, 20, 34, 40, 58 [88].

À Berkeley, l'équipe de Kinght et Cohen fut la première à réaliser que ces discontinuités dans le spectre du Sodium [86] été liées à la fermeture des couches électroniques. Pour cela ils ont adapté le modèle de Jellium , utilisé pour les agrégats alcalins et qui est depuis appliqué pour de bon conducteurs. Le modèle de Jellium prend en considération les différentes caractéristiques des agrégats en phase gazeuse tel : l'abondance relative d'une masse donnée, la polarisabilité et le potentiel d'ionisation entre les atomes. Il est basé sur le faite qu'il est possible de déterminer les propriétés des agrégats seulement par les caractéristiques électroniques, sans prendre en considération la position des noyaux.

L'agrégat est considéré comme une sphère métallique qui contient des électrons de valences. Dans le cas des alcalins, chaque atome donne un électron s qui est confiné dans un potentiel à symétrie sphérique. Donc l'agrégat sera sous forme d'une sphère de cœur positif, uniforme et statique entourée d'électrons en mouvement.

Si le potentiel est de type oscillateur harmonique, ou bien puits carré l'ordre des niveaux est le même à des dégénérescences près :

$$1s^2, 1p^6, (1d^{10}, 2s^2), (1f^{14}, 2p^6), (1g^{18}, 2d^{10}, 3s^2)\ldots$$

Les remplissages correspondant sont :

$$2, 8, 18, 20, 34, 40, 58, 68, 70\ldots$$

On peut clairement constater que les premier nombres de la suite correspondent aux valeurs de n_e trouvés plus hauts, sauf pour n_e= 18, qui en expérimentale apparait comme une discontinuité nettement moins marquée.

L'analyse réalisée sur des agrégats pur de Pb, Ni et Co par spectroscopie de masse a révélé des pics correspondant à des arrangements atomiques particulier [89].

$$n_a = 7, 13, 55, 147, 309, 561\ldots$$

En général, pour les métaux de transitions Fe, Ni, Co etc… et les alcalino-terreux Ba, Ca, Mg les nombres magiques observés sur leurs spectre de masse, sont beaucoup plus due à des organisations atomiques qu'à des remplissages de couche électroniques externes.

I.5.2. Quelques propriétés particulières des agrégats métalliques

I.5.2.1. Propriété physico-chimique

Lors de la diminution de la taille de l'agrégat, des modifications physiques propres à ce dernier se produisent. La distance interatomique diminue, et elle apparait déjà lors de la comparaison entre le métal massif et le dimère.

	X_2	X_∞
Na	3,08	3,71 c.c.
K	3,91	4.62 c.c
Cu	2,2	2,55 c.f.c

Tableau I.1 *: Distance interatomique (en Angström) du dimère (X_2) et du métal massif (X_∞) [90].*

Variation de l'énergie de cohésion: variation du point de fusion

Des résultats très intéressants ont été obtenus grâce à l'étude faite sur l'évolution de la température de fusion en fonction de la taille des agrégats.

Les auteurs ont démontrés que la diminution de la taille de l'agrégat entraine la diminution de sa température de fusion. Buffat et all [91, 92] ont réalisé une étude sur des échantillons d'agrégats d'or (1nm<R <15nm) par diffraction électronique. Les résultats illustrent une décroissance rapide de la température de fusion au fur et à mesure que le diamètre décroit. Ils ont évalué une température de fusion de 11920 K pour une particule de diamètre égale à 20 nm. Alors qu'elle est d'environ 820K pour un agrégat de 2,5 nm de diamètre (presque 2 fois moins que la température de fusion de l'élément massif ≈ 1337K).

Récemment, Haberland et all [93, 35, 94] ont trouvé que pour des agrégats de Sodium de petite taille (55 à 199 atomes), la valeur de la température de fusion était inférieure de 33% à comparer avec la température de fusion du solide massif et que la variation de la température de fusion en fonction de la taille n'était pas parfaitement décroissante mais elle présentait de nombreuse discontinuités d'évaluation (±50K).

I.5.2.2. Propriétés magnétiques

En règle générale, les propriétés magnétiques d'un matériau sont fortement liées à la taille, la composition, l'environnement atomique local ainsi que la température.

Dans les agrégats et les solides, l'origine principale du magnétisme est le courant associé au mouvement des électrons (magnétisme orbital) et au moment intrinsèque des électrons (magnétisme du spin), autrement dit le magnétisme est lié au comportement des électrons de valence. Presque tous les atomes possèdent un moment magnétique qui ne disparait jamais (règle de Hand) [12]. Alors que pour les solides massif peu d'entre eux présentent une magnétisation spontané d'où le faite qu'il est intéressant de se concentré sur comment une entité peut se comporté lorsqu'elle est située entre l'atome (presque toujours « magnétique ») et le solide (presque toujours « non-magnétique »). Les électrons qui occupent des orbitales localisées sont la source du magnétisme atomique. Par contre, dans le cas des métaux de transition, c'est les électrons qui occupent des niveaux de conduction « d », et qui sont délocalisés, sont responsable du magnétisme. Pour les agrégats, c'est beaucoup plus cette propriété qui causera leur magnétisation spontanée.

Au début des années 1990, les groupes de De Heer [95, 96, 97] et de Blomfield [98-102] ont réalisé les premières mesures sur des particules (de Bande 3d) dans un jet et cela en utilisant des champs magnétiques inhomogènes. On peut rencontrer des difficultés dans l'interprétation des résultats dans la mesure où les caractéristiques des agrégats sont très influées par la température et qui est difficile à déterminer. Par contre pour les métaux de transition, pour tous les cas possible on a remarqué, dans l'agrégat une augmentation du moment magnétique par atome [95, 98, 101] à comparer avec le solide massif et même l'apparition de moment magnétique dans des métaux à l'origine paramagnétiques comme Rh [102].

I.5.2.3. Propriétés optiques

Les propretés optiques d'agrégats métalliques ont été utilisé dés l'antiquité dans le but de créer des verres décoratifs, mais leurs origines n'a été étudier qu'on XIX^{éme} siècle par M. Faraday [103] puis par la suite modéliser au début du XX^{éme} siècle par G. Mie [14].

Les caractéristiques optique des nanomatériaux laissent leurs applications varier dans divers domaine, tel que l'optique linéaire et non-linéaire, les polariseurs, les capteurs solaires, l'exaltation locale du champ électromagnétique et le marquage moléculaire. Donc leur réponse optique nous permet de voir leurs caractéristiques intrinsèques. Autrement dit, cette outils s'avère être très performant pour l'analyse de leurs propriétés fondamentales qui

présente l'avantage d'être sans contact et de permettre d'accéder aux propriétés d'agrégats dans une matrice transparente.

Il est possible d'envisager des comportements complètement différents, tous dépend de la densité d'agrégats présent dans les matériaux. Quand on diminue le diamètre d'un agrégat, il se produit une modification dans sa structure électronique ce qui entraine forcement un changement des propriétés optiques [104, 105, 106]. La réponse optique d'un métal est directement reliée aux propriétés des électrons et du réseau par l'intermédiaire de son constant diélectrique. Les propriétés optiques spécifiques des agrégats métalliques sont considérées comme étant une conséquence de l'apparition d'une résonance dans leur spectre d'absorption: La résonance plasmon de surface. Si on considère des petites particules d'un métal noble, différentes caractérisation [107-110] ont démontré que la résonance plasmon de surface se localise dans la gamme visible du spectre. Dans le cas des petites sphères d'argent et d'or, elle se situe autour de 400 nm dans le bleu et autour de 520 nm dans le vert, par conséquence on obtient des colorations respectivement jaune et rouge des nanomatériaux obtenu après leurs dispersions dans une matrice diélectrique transparente ($Al_2 O_3$ par exemple). S'il y a une inclusion sphérique de taille quelconque, cette effet est décrit par le model de Mie [14]. La coloration peut être plus simplement décrite dans l'approximation quasi statique si la taille est faible à comparer à la longueur d'onde optique (inferieur ou de l'ordre de 1/10). La position et la longueur spectrale de la résonance plasmon de surface, ainsi que la sensibilité à la polarisation de la lumière dépondent à la fois des propriétés intrinsèque des agrégats (composition, structure, taille, forme) mais aussi de leur environnement local.

I.6. Conclusion

A travers ce chapitre, nous avons pu revoir la signification d'un agrégat et cela en mentionnant les différents types d'agrégats qui peuvent exister ainsi que les caractéristiques qui les distinguent les uns des autres. On a discuté en détaille les propriétés des différents agrégats existants et leur domaine d'applications. On a approfondi dans la définition des agrégats métalliques car sa fera l'objet de notre recherche.

Chapitre 2

Interaction laser femtoseconde-agrégats métalliques

II.1. Introduction

En présence d'un champ électromagnétique, le terme d'intensité vise une notion qui doit forcément être reliée à une référence définit par les physiciens atomiciens comme étant l'intensité $\mathbf{I_0}$ propre à un rayonnement dont le champ électrique se trouve être le même que celui subit par l'électron qui se trouve sur la première orbite de Bohr de l'atome d'hydrogène [111]. On peut estimer l'intensité d'un champ quelconque par le rapport de l'intensité de ce dernier par $\mathbf{I_0}$. La valeur de ce rapport est forcément liée à ce qui est étudié. On peut donc définir le rapport et dans un cadre de processus atomiques induits par des impulsions laser, comme suite :

$$\begin{cases} \frac{I}{I_0} \ll 1 \text{ Champ peu intense ou faible.} \\ \frac{I}{I_0} \approx 1 \text{ Champ intense ou fort.} \\ \frac{I}{I_0} \gg 1 \text{ Champ très intense.} \end{cases} \quad \text{(II.1)}$$

Où I est l'intensité crête de l'impulsion. Par conséquent, la période pendant laquelle l'électron parcours cette même orbite représente la référence temporelle. Si on considère une révolution circulaire, approximativement cette valeur est de τ_0=152 femtoseconde (1fs = 10^{-15}s). Par comparaison, le terme d'impulsion brève désigne les rapport $\frac{\tau}{\tau_0}$ de l'ordre de 10. Il s'avère que ce qui précède n'est valable que dans le cas de l'étude de la dynamique électronique atomique. Le tableau II.1 regroupe, dans ce cadre, les qualificatifs qui caractérise l'impulsion selon sa durée.

Nanoseconde (1ns = 10^{-9} s)	impulsion très longue
Picoseconde (1ps = 10^{-12} s)	impulsion longue
Femtosecond (1fs = 10^{-15}s)	impulsion brève
Attoseconde (1as = 10^{-18} s)	impulsion ultra-brève

Tableau II.1 *: Qualificatifs d'une impulsion en fonction de sa durée [111].*

II.2. Historique

C'est au cours des années 80, que l'observation des Raies d'émissions provenant d'atomes de gaz rare chargé anormalement a été faite grâce à l'étude effectué sur l'interaction de laser intense avec des jets de gaz pulsés [2, 112]. Il été de l'ordre de l'impossible d'expliquer les états de charge obtenus aux éclairements considéré en utilisant les mécanismes d'ionisation d'un atome isolé. A. Mc Pherson et all. [9] ont démontré, et pour la première fois que cette émission est dû à la présence d'agrégat dans le jet de gaz. Malgré la faible densité de ces jets, les conditions de formation des agrégats étudiés auparavant par O. Hagenagont [113] été réunis, ce qui a permet d'ouvrir un nouveau champ d'étude très prometteur ayant comme thème « L'efficacité de conversion du rayonnement laser en rayonnement XUV » et partout dans le monde. Plusieurs équipe ont pris en considérassions les jets d'agrégats comme des cible potentielle de rayonnement X ou bien XUV (C. K. Rhodes et al. à Chicago dans l'iIllinois, T. Ditmire et al. à livermore en Californie, M. Schmidt et al. à Saclay en France. K. Kondo et al. À Chicago puis au Japon à Tsukuba, etc….).

Premiers Résultats

Juste après que le groupe de A.Mc Pherson [9] a effectué une série d'expériences visant l'interaction de jets d'agrégats de gaz rare avec un laser femtoseconde, plusieurs autres expériences similaire ont été réalisées mais en utilisant d'autres évidence, le rôle primordiale des agrégats est dans l'émission des rayonnements UV ou X.

L'étude de l'influence des paramètres du laser et des agrégats sur les spectres d'électron, les spectres ioniques, l'efficacité de l'absorption de l'énergie laser par les agrégats, la génération de rayonnement X, mais aussi la possibilité de générer un rayonnement harmonique à été menée et d'une façon plus approfondie par T. Ditmire et son équipe [114]. D'autre part, ils ont constaté que lorsque le rayon moyen des agrégats augmente, l'émission R-X augmente aussi [115, 10, 116, 117]. La taille des agrégats dans ces types d'expériences est de l'ordre de 10^3 à 10^6 atomes par agrégats. Une absorption de l'énergie laser est démontrée par les résultats expérimentaux obtenus. Dans le cas d'agrégats de Xenon [114], une absorption aux voisinages de 100% a été mesurée. La collaboration entre le groupe de M. schmidt et celui de la physique du solide (GPS) de l'université Jussien a permis récemment une étude de l'interaction de jets d'agrégats pulsés de Krypton avec une impulsion laser ultra-courte (≈ 130fs) [118] qui a montré l'observation d'une émission de rayonnement X provenant d'ions multichargés. En utilisant le même banc laser, le groupe de physique de solide (GPS) de

l'université de Jussien a pu réaliser une étude sur la production des rayonnements X à partir d'agrégats de Xénon et de Krypton [119]. Grace à l'étude du taux absolu de rayonnement X en fonction de l'intensité crête du laser, ils ont pu démontrer la production d'états de charges élevés (jusqu'à de l'Ar^{+16} avec seulement 10^{17} W/cm^2) provoquant des lacunes au niveau de couches K. a cause de création de ces lacunes, des intensités bien élevées doivent être utilisée lorsque le taux d'ions d'un état de charge donné est saturé, on aura une augmentation du volume focale en fonction de l'intensité I du laser, ce qui crée un signale isotrope qui lui aussi augmente avec l'intensité. D'autres études ont vu le jour et ont conduis à des versions légèrement différentes, lors de l'irradiation des agrégats de Xenon par une impulsion laser de longueur d'onde 527 nm et d'une durée de 2 ps (à mi-hauteur) a donné un taux de rayon X émis par ces derniers au-dessus de 1 keV en fonction de l'intensité laser [114].

II.3. Laser femtoseconde

Depuis que Theodore H. Maiman a développé le premier laser à rubis en 1960 [120], la technologie du laser a vu une grande évolution pendant les 40 dernières années. Ces avancées ont permis de mettre en ouvre des sources laser qui peuvent délivrer des impulsions lumineuse d'une durée égale à quelques dizaines de femtosecondes (1fs = 10^{-15}seconde), et leurs énergies peut atteindre quelques joules et ceci est accompagné d'un taux de répétition variant entre 10 Hz et quelque KHz. Ces sources dont l'intensité peut valloire 10^{20} W.cm^{-2} représentent un excellent outil de recherche pour les scientifiques. Il a fallu disposer d'un matériau amplificateur performant et aussi développer une méthode d'amplification des impulsions qui ne conduise pas au dépassement du seuil de dommage des matériaux amplificateurs et des optiques utilisés dans la chaine d'amplification pour pouvoir développer de telles sources. Parmi les meilleurs matériaux amplificateur à 800 nm, on trouve le saphir dopé titane (Ti : Sa) [121]. Les caractéristiques qui font de ces matériaux les meilleurs matériaux amplificateur sont : seuil de dommage et fluence de saturation élevés, une gamme de laser très large (Entre 650 et 1100 nm). Grace à ces caractéristiques, le matériau peut amplifier des impulsions très brèves à haute énergie et à des taux de répétition élevés. En 1985 D. Strickland et G. Mourou ont déterminé une autre étape essentielle et qui est l'amplification à dérive de fréquence (appelée en Anglais; **C**hirped **P**ulse **A**mplification) [122, 123], cette technique à permis de pallier aux problèmes liés à l'amplification courtes à hautes énergie. Cette technique est utilisé par la plupart des systèmes laser impulsionels des

puissances crêtes de plusieurs centaine de Térawatt (1TW = 10^{12}W) peuvent êtres atteintes [124].

Les durées les plus courtes obtenues de nos jours malgré les progrès incontestables obtenus avec l'association de la technique CPA et l'utilisation du saphir dopé au titane comme matériau amplificateur, sont de l'ordre de 15 fs [125-129]. C'est la largueur fini de la bande spectrale de gain du saphir dopé titane conduisant à un rétrécissement spectral de l'impulsion amplifiée et donc à une augmentation de sa durée minimale, qui est responsable de la limitation de la durée.

Divers techniques utilisant des effets non linéaires ont été développées : technique de la fibre creuse [130-133] de la filamentation [134, 135, 136] ou encore OPCPA [137, 138], dans le but de diminuer encore la durée des impulsions et d'obtenir des impulsions de quelques cycles optiques seulement (1 cycle optique est égale à environ 2,6 fs à 800 nm).

Le laser Titane Saphir est une découverte récente, il est considéré comme étant très pratique pour la génération des impulsions ultra-courtes et intenses. De plus, grâce à ces propriétés typiques, ce laser est comptabilisé parmi ceux les plus efficace.

Dans le cadre de notre travail, on s'est entraider d'un laser Titane-Saphir pour établie notre étude et pour l'obtention de nos résultats que nous verrons dans le quatrième chapitre.

II.3.1. Principe d'une chaine laser femtoseconde

La figure II-1, regroupe les différents éléments d'une chaine laser femtoseconde, cette figure illustre l'évolution de la durée temporelle de l'impulsion ainsi que la puissance. Quatre éléments fondamentaux font la base de cette chaine ; mis à part les faisceaux de pompes : l'oscillateur, l'étireur, l'amplificateur et le compresseur.

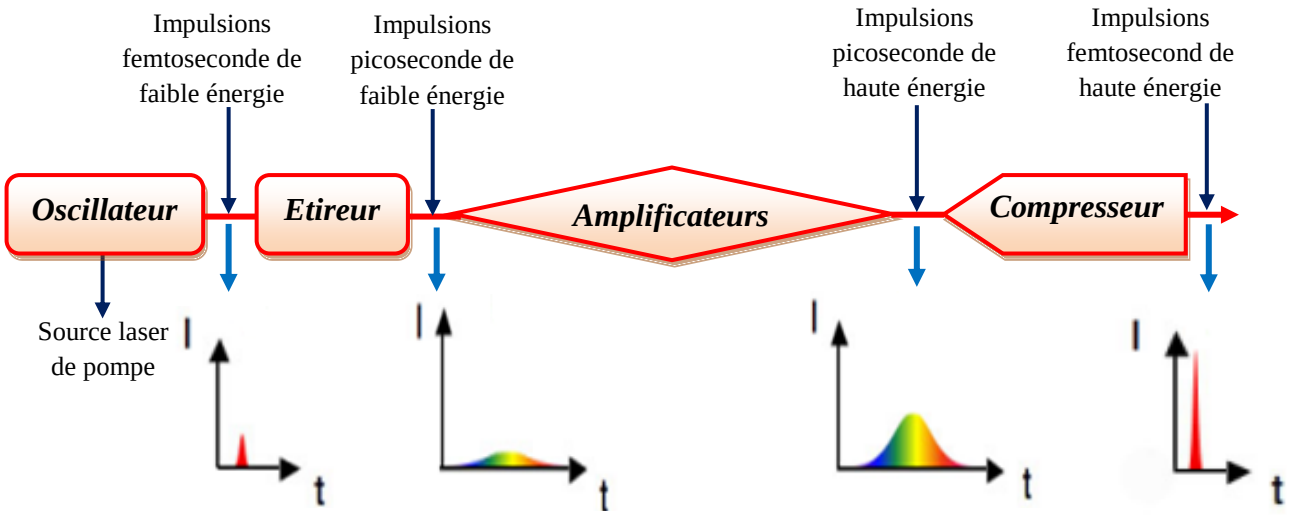


Figure II.1 *: Schéma du principe laser femtoseconde [139, 140, 141].*

1. Source du laser de puissance, **l'oscillateur** sert à généré une impulsion laser d'une durée de quelques femtoseconde et de l'ordre de quelque joules. L'amplification d'une telle source rencontre un problème à cause de hautes intensités atteintes dans le milieu d'amplification, ce qui peut entrainer l'endommagement des différents composants optiques de la chaine laser. Donc, dans un premier lieu on doit étirer l'intensité de l'impulsion pour la réduire, pour cela, on utilise **un étireur** à réseau, qui sert aussi à ordonner les fréquences de l'impulsion temporelle, en plus de l'étirer on dit alors que le faisceau est « chirpé » [141]. A partir de la forme du spectre d'entré dans l'étireur on put avoir l'information sur la durée et l'intensité du laser en sortie de chaine [142].

2. En second lieu, on a **l'amplification**. Après avoir être étirée temporellement, l'impulsion laser traverse divers milieux d'amplification (typiquement cristaux Titane Saphir dont le milieu est inversé par pompage avec laser Nd : YAG) [142]. Le milieu amplificateur peut donner son énergie à cette impulsion sans qu'elle n'atteigne une intensité au-delà du seuil d'endommagement des matériaux traversés (10^{11} à 10^{14} $W.cm^{-2}$) puis quelle est de longue durée.
3. en fin, pour que l'impulsion puisse atteindre de très hautes intensités, et être recompresser. On doit utiliser **un compresseur** à réseau dans le quel les différentes fréquences du laser son utilisés dans le but d'en faire sortir une impulsion laser d'une plus courte durée (quelque femtosecondes).

   Pour la réalisation des expériences laser/plasma, l'impulsion doit avoir les meilleurs caractéristiques : contraste, durée, énergie, longueur d'onde.

II.3.2. Notion sur les impulsions laser ultra-brèves

Le produit d'une fonction enveloppe A(t) et d'une onde porteuse oscillant à la fréquence fondamentale du laser $\boldsymbol{\omega_0}$ crée un champ électrique à partir des impulsions lumineuses émises par une source laser à dérive de fréquence dite CPA. Si on suppose que l'enveloppe temporelle de l'impulsion est de forme gaussien et en négligeant la dépendance spatiale du champ électrique complexe de l'impulsion, ce dernier peut alors s'écrire comme suite :

$$E(t) = E_0 exp\left(\frac{-2t^2}{\tau^2}\right) \exp[j(\omega_0 t + \phi_0)] \quad \text{(II.2)}$$

$\emptyset_0$: Le déphasage entre l'onde porteuse du champ électrique de l'impulsion par rapport à son enveloppe. Dans la littérature le terme CEP (Carrier- Enveloppe Phase) est aussi utilisé, de ce fait l'éclairement ou l'intensité est donné par :

$$I(t) \propto |E(t)|^2 = E_0^2 exp\left(\frac{-2t^2}{\tau^2}\right) \quad \text{(II.3)}$$

τ : Largeur à $\frac{1}{e^2}$ en intensité.

La valeur de la durée à mi-hauteur en intensité Δt de l'impulsion est dépendante de τ :

$$\Delta t = \tau \times \sqrt{2\ln(2)} \quad \text{(II.4)}$$

La figure II.2, regroupe le champ électrique (rouge) et l'intensité (bleu) de deux impulsions d'une durée à mi-hauteur de 25 fs et 5fs respectivement avec une longueur d'onde centrale du laser égale à 800 nm. Pour cette fréquence, on estime la période d'une oscillation du champ électrique a $\frac{\boldsymbol{2\pi}}{\boldsymbol{\omega_0}}$ = 2.6 fs. Actuellement la durée des impulsions les plus brèves qu'on peut générer en utilisant une source laser CPA classique est de 5 fs [134, 143]. Dans le cas d'une telle durée si courte, on doit prendre en considération l'effet du terme $\emptyset_0$ sur la forme du champ électrique. En effet, l'évolution de la valeur du terme $\emptyset_0$ affecte d'une manière évidente la positon du maximum de champ électrique par rapport au maximum de l'enveloppe comme il est bien démontré sur la figure II.1.b). Il est donc important de contrôler la valeur de $\emptyset_0$ [144]. À l'aide de la transformée de Fourrier du champ électrique complexe E(t), l'amplitude spectrale complexe E (ω) du champ électrique put être déterminé grâce aux relations suivantes :

$$E(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} E(\omega) \times \exp(-j\omega t)\, dt \quad \text{(II.5)}$$

$$E(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} E(\omega) \times \exp(-j\omega t)\, d\omega \quad \text{(II.6)}$$

avec : $E(\omega) = A(\omega) \times \exp[j\phi(\omega)]$

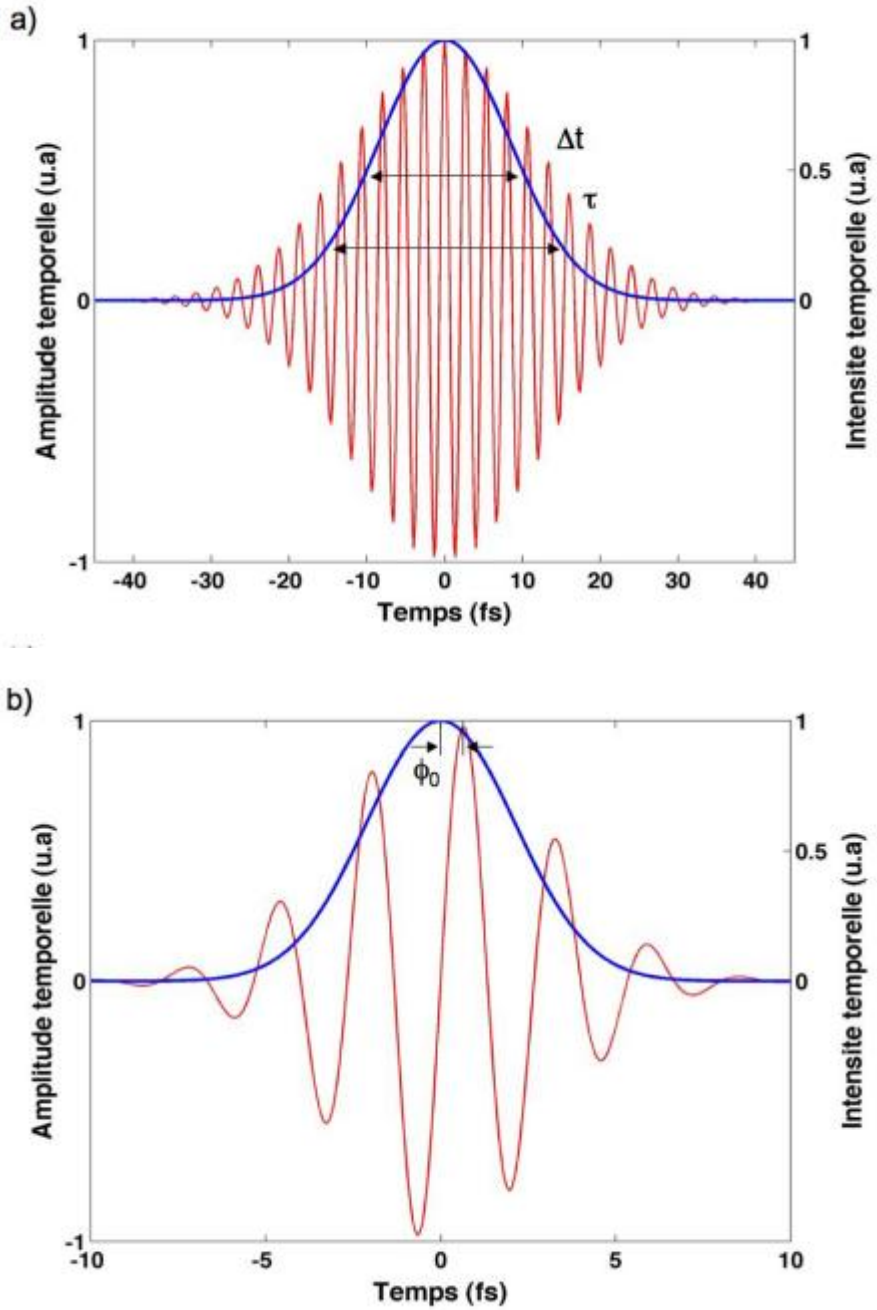


***Figure II.2**: Champ électrique (en rouge) et intensité temporelle associée (en bleu) d'une impulsion de durée à mi-hauteur : a) de 25 fs et b) de 5 fs (λ_0 = 800 nm). Δt et et τ sont respectivement les durées à mi-hauteur et à $1/e^2$ en intensité de l'impulsion. Φ_0 est la CEP de l'impulsion [138].*

D'après ces relations, le champ électrique de l'impulsion lumineuse est déterminé entièrement à partir de l'amplitude temporelle A(t) ainsi que la phase temporelle ∅ (t), ou bien à partir de l'amplitude spectrale A (ω) et la phase spectrale $\emptyset(\omega)$. En présence des impulsions gaussiennes, le largueur temporel à mi-hauteur est :

$$\Delta t \,.\, \Delta\omega \geq 4\ln(2) \tag{II.7}$$

Lorsque la phase spectrale est nulle (cas idéal), on dit alors que l'impulsion est limité par la transformée de Fourier. Donc cette impulsion a la plus courte durée par rapport à une forme donnée du spectre, l'équation (II.7) se transforme d'une inégalité en une égalité et on aura l'équation suivante :

$$\Delta t = \frac{2\ln(2)}{\pi}\frac{\lambda_0^2}{c\Delta\lambda} \tag{II.8}$$

II.3.3. Propagation d'une impulsion laser dans un plasma

Pour cette partie, on va prendre en considération la propagation d'une onde non-relativiste dans un plasma [142]. Quand une impulsion laser pénètre au cœur d'un plasma, elle se propage jusqu'à une densité noté densité critique, et c'est à partir de cette densité que se crée une onde réfléchie et une autre transmise évanescente. Si on a une onde plane progressive harmonique et de la forme $\vec{E} = E_0 e^{i(\omega_0 t - k_0 x)}\vec{e}_y$ et qui obélie aux équations de Maxwell :

$$\begin{cases} div(\vec{E}) = \frac{\rho}{\varepsilon_0} \\ \overrightarrow{rot}(\vec{E}) = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \\ div(\vec{B}) = 0 \\ \overrightarrow{rot}(\vec{B}) = \mu_0 \vec{j} + \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \end{cases} \tag{II.9}$$

Lorsque l'amplitude du champ électronique est faible (onde non-relativiste). Il est possible de supposer que la réponse d'un électron sera linéaire, ce qui permet de déterminer le vecteur densité de courant.

$$m_e \frac{d\vec{v}_e}{dt} = -e\vec{E} \tag{II.10}$$

$$\text{Alors,} \quad \vec{j} = -n_e e\overrightarrow{v_e} = -i\frac{n_i e^2 \vec{E}}{m_e \omega_0} \tag{II.11}$$

La combinaison entre ces équations donne l'équation de propagation de l'onde

$$\overrightarrow{rot}\left(\overrightarrow{rot}(\vec{E})\right) = \overrightarrow{grad}\left(\frac{\rho}{\epsilon_0}\right) - \overrightarrow{\Delta E} = -\mu_0 \frac{\partial \vec{j}}{\partial t} - \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} \tag{II.12}$$

En supposant la neutralité du plasma, on peut déduire la relation de dispersion du laser.

$$k_0^2 c^2 = \omega_0^2 - \omega_{pe}^2 \quad \text{(II.13)}$$

$$\text{Où : } \omega_{pe} = \sqrt{\frac{n_e e^2}{m_e \epsilon_0}} \quad \text{(II.14)}$$

Quand $k_0^2 \leq 0$ autrement dit, lorsque $\omega_{pe} \geq \omega_0$ l'impulsion laser ne se propage plus, on atteint la densité telle que les deux pulsations du plasma ainsi que celle du laser son égaux cette densité est appelée la densité critique $\mathbf{n_c}$ et vaut

$$n_c = \frac{\omega_0^2 . \epsilon_0 . m_e}{e^2} = 1{,}1.10^{21} . \lambda_{\mu m}^{-2} \, [cm^{-3}] \quad \text{(II.15)}$$

Pour $\omega_{pe} \geq 0$ le vecteur d'onde k_0 devient entièrement imaginaire. On aura la propagation de l'onde transmise dans le plasma, donc une onde évanescente qui est de la forme $\vec{E} = E_0 e^{-kx} e^{i\omega_0 t} \ \overrightarrow{e_y}$ où $k = \frac{\omega_0}{c} \sqrt{\frac{\omega_{pe}^2}{\omega_0^2} - 1}$ est homogène à l'inverse d'une longueur appelée « épaisseur peau ». Cette épaisseur est utilisée pour caractériser la pénétration de l'onde au cœur du plasma, car à cette profondeur l'amplitude du champ laser diminuera d'un facteur 1/e.

Pour ce modèle, on considère que les ions sont immobiles, et si on tient compte de leur mouvement la relation de dispersion devient :

$$k_0^2 c^2 = \omega_0^2 - \omega_{pe}^2 - \omega_{pi}^2 \quad \text{(II.16)}$$

Où $$\omega_{pi} = \sqrt{\frac{Z n_e e^2}{m_i \epsilon_0}} \quad \text{(II.17)}$$

ω_{pi} : Pulsation plasma ionique, et il est négligée car il est beaucoup plus petite que la pulsation électronique [139].

II.4. Interaction laser-matière en régime femtoseconde

De puis la découverte des impulsions laser ultra-brève et intense, l'interaction laser-matière devient un processus de base de nombreuse applications et dans différents domaines, à titre d'exemple, le micro usinage et le marquage des matériaux, la découpe, et le perçage l'ablation, le dépôt de couches minces et le traitement des surfaces, la chirurgie, ainsi que la restauration des ouvres d'art [145, 146, 147]. Au cours de l'interaction du laser avec la matière, le matériau absorbe l'énergie du faisceau laser. Face à un tel faisceau, les métaux,

semi-conducteurs ou les diélectriques réagissent différemment [148]. Dans notre étude on va s'intéresser à l'interaction du laser avec les agrégats métalliques.

En général, lorsque un faisceau laser interagie avec la matière, les électrons vont absorber l'énergie apportée par les photons constituant le faisceau selon des mécanismes qui dépendent de la nature du matériau. Les métalliques sont constitués d'un réseau d'ions encerclé par des électrons plus ou moins liés, on peut clairement distinguer les électrons de cœur des électrons de valence. Les électrons de cœur sont généralement fortement liés avec les ions du réseau, ils possèdent une énergie de liaison très élevées (plusieurs centaines d'eV [149]), de ce fait ils sont peu sensible à l'énergie générée par le faisceau laser excitant. Contrairement aux électrons de valences qui d'habitude se trouvent sur la couche externe des atomes, ils sont délocalisés et partagé entre plusieurs ions, leurs faibles énergies de liaison sont facilement atteintes par le faisceau laser. L'énergie correspond aux énergies des photons dans le domaine visible et proche des UV. A partir de ces électrons, on put déterminer la nature du matériau.

II.4.1. Interaction laser femtoseconde avec les métaux

Lorsqu'on excite un métal avec des impulsions lasers femtosecondes de hautes intensités, seuls les électrons libres interagissent puisque l'impulsion est courte, le temps de l'interaction va également être court donc le transfert d'énergie des électrons vers le système (le réseau cristallin) sera plus long que la durée de l'impulsion. D'après l'article de J Hohlfed et al [150], l'interaction laser ultra-court avec les métaux s'effectue selon trois intervalles.

1. Juste après l'interaction laser ultracourt avec le métal, les électrons vont dans différents direction et perde totalement leurs équilibre, on dit alors qu'ils sont dans un état de « non équilibre » [151], deux processus concurrents favorisent ce déséquilibre :

- Le premier vise **le mouvement balistique** des électrons se trouvant au plus profond du métal et qui une fois excité, leurs vitesses s'approche de celle de Fermi autrement dit environ 10^6 m/s [152].
- Le deuxième est **l'évolution de la température** des électrons due aux collisions des électrons excités avec les électrons qui entourent le niveau de Fermi [153].

2. Le second intervalle de temps commence lorsque l'équilibre thermique entre les électrons chaux est atteint. Dans cette gamme de temps on distingue une distribution de Fermi et la température des électrons devient différente de celle du réseau. Ces électrons chauds se dirigent et se propagent avec une vitesse bien plus lente que celle du mouvement

balistique. Dans la partie la plus profonde du métal, le couplage électron-phonon, qui régie de cette diffusion sert à refroidir le bain d'électron.

3. Le troisième et le dernier intervalle de temps, c'est là où grâce à un échange thermique entre les électrons et le réseau cristallin dû à leurs différentes capacités thermiques ; ces derniers atteignent l'équilibre thermique.

II.4.2. Interaction laser-agrégats métalliques

Dans cette partie, nous allons étudier la réponse électronique et ionique d'un agrégat métallique soumis à une excitation laser femtoseconde intense. Le faite de varier les différent paramètres du laser (durée d'impulsion, longueur d'onde et intensité) nous permet d'observer les comportements dynamiques des agrégats. Dans le cas d'un agrégat métallique, l'apparition de photo-absorption prouve que la fréquence du laser joue un rôle important dans la dynamique électronique.

II.4.2.1. La réponse optique

On détermine la réponse optique d'un agrégat métallique comme étant l'interaction de la fonction diélectrique d'un solide avec l'onde électromagnétique de la lumière. Il existe deux contributions, la contribution inter-bande qui régie des transitons électroniques induites par l'absorption d'un photon entre deux bandes d'énergie, cette contribution est localisée dans l'intervalle entre la bande de valence et la bande de conduction. Lorsqu'un photon incident possède une énergie supérieure à celle du seuil des transitions inter-bandes, un électron qui se trouve dans un état occupé dans la bande de valence va passer dans un autre état vide de la bande de conduction. Cet électron n'aura pas besoin d'apport extérieur, cette transition est dite « directe » [154]. Pour l'autre contribution, il s'agit des transitions électroniques qui se déroulent au cœur de la bande de conduction (inter-bande), elle se passe lorsqu'on a une énergie du photon incident inférieur au seuil des transitions inter-bandes. Là aussi, on aura le saut d'un électron d'un état occupé de la bande de conduction vers un autre état vide de cette même bande. Cette fois-ci l'électron aura besoin d'apport extérieur d'une collision avec un phonon acoustique pour qu'il puisse aller occuper un état vide de la bande de conduction chose pour la quelle, la transition inter-bande est dite « indirecte » [154]. Le model de Drude décrit clairement cette contribution et définit l'électron de conduction comme ayant un comportement d'électron quasi-libre.

II.4.2.2. Modèle de Drude

Le modèle de Drude, représente l'adaptation effectué de la théorie cinétique des gazes aux électrons des métaux qui ont été découvert par J.J. thomson en 1897 puis adapté en 1900. Si on considère les électrons d'un métal comme étant des particules classiques ponctuelles confinées à l'intérieur du volume qui est définie par les atomes de l'échantillon. On aura un gaz qui est entrainé dans le mouvement d'ensemble, superposé aux mouvements individuels par l'intermédiaire des champs électriques et magnétiques et freiné par les collisions. Le type de collisions envisagées par Drude est les collisions sur les cœurs d'atomes. Malgré que ce model soit basé sur une description purement classique du mouvement d'électrons (hypothèse démenties), ce dernier permet de prendre en considération les différentes propriétés des métaux comme la conductivité électronique et la conductivité thermique [155].

II.4.2. 3. Epaisseur de peau

D'après le modèle de Drude, lors de la pénétration d'une onde électromagnétique dans un milieu conducteur, son intensité décroit exponentiellement. Pour une onde plane allant vers les x positifs et pénétrant à la surface du métal, la décroissance de son intensité est de la forme :

$$e^{\frac{-x}{\delta}} \qquad \text{(II.18)}$$

δ: L'épaisseur de Pau ou la profondeur de pénétration du champ dans un métal [153] avec :

$$\delta = \frac{c}{\omega n_i} \qquad \text{(II.19)}$$

n_i : La partie imaginaire de l'indice de réfraction.

c : La vitesse de la lumière

ω : La fréquence laser.

À l'intérieur d'un métal, les champs sont nuls lorsque la distance est proche de l'épaisseur de peau [148].

II.4.2.4. Plasmon

À l'intérieur de l'agrégat, les électrons libres possèdent une pulsation propre qui se trouve être liée à leur force de rappel électrostatique aux ions :

- Si le milieu est infini, alors cette excitation de pulsation est dite plasmon de volume (correspondant à des ondes de compression [154]). La fréquence plasmon qui lui est associé est dépendante de la densité d'électron selon l'équation (II.14).
- Si le milieu est limité par une surface c'est-à-dire des agrégats. On appel alors l'excitation de cette pulsation, « plasmon de surface » aussi appelé « plasmon de Mie » elle correspond à des oscillations collectives dipolaire de translations des électrons par rapport aux ions. En première approximation, la fréquence de Mie est estimée à :

$$\omega_{Mie} = \frac{\omega_{pe}}{\sqrt{3}} \qquad \text{(II.20)}$$

Cette fréquence varie selon la variation de la taille des agrégats ainsi que leur température [157, 33, 158].

On peut exciter la fréquence de Mie à l'aide d'un laser : ses variations au cours du temps forcent les oscillations hors d'équilibre de la sphère électronique à comparer à celle des ions.

II.4.2.5. Plasmon de surface

L'oscillation collective des électrons libres qui se situent à l'interface entre deux milieux différents par exemple l'interface entre un métal et un diélectrique ; lorsque les conditions de couplage sont remplies, on aura un transfert d'énergie du faisceau incident aux électrons libres proches de l'interface métal/ diélectrique ce qui cause une chute de la réflectivité. La particularité de ces mode est de concentrer l'énergie électromagnétique dans des régions dont la taille est de l'ordre de la longueur d'onde ce qui ouvre des possibilités en nano-photonique [159, 160, 161]. Nombreux paramètres influent sur la résonance des plasmons, tell que la nature des matériaux. Lors de l'excitation des plasmon par une lumière on aura une forte absorption et une exaltation du champ local électromagnétique. C'est au début du 20ème siècle, qu'on a commencé à s'intéresser aux modes plasmon (Zenneck, 1907, Mie, 1908, Sommerfeld 1909) et c'est en 1968 que Otto [162] à prouvé qu'il est possible d'obtenir une excitation de ces ondes de surface. Avec une réflexion totale atténuée, le même résultat a été obtenu par kretschmann et Raether [163] mais à partir d'une configuration de la méthode de la réflexion totale atténuée. C'est grâce à ces études que, les travaux dans les domaines des plasmon de surface surtout dans le cadre de la caractérisation des films minces et l'étude des processus se passant sur des interfaces métalliques, ont pu avancer.

II.4.2.6. Collision électrons-atomes assisté par laser

Une particule chargée, exemple un électron, est diffusé en présence d'une onde électromagnétique, il est possible qu'elle échange de l'énergie avec ce dernier, pour l'étude de la formation et du chauffage de plasma dans les gazes cette échange d'énergie a une importance cruciale puisque l'absorption d'énergie est dominante à comparer à l'émission lors de la phase de croissance de l'impulsion. L'apparition d'électrons de hautes énergies est due, en particulier à de nombreux phénomènes d'ionisation multi-photonique et de Bremsstrahlung inverse. C'est au années 70 que cette problématique s'est développée mais sa n'empêche que les expériences sont difficiles à réaliser [111].

Le but visé est l'étude de l'influence des paramètres du champ laser (l'intensité, la fréquence et la polarisation) sur les collisions. On recherche aussi d'autres nouveaux effets sur les distributions angulaires, les résonances ou les interférences. Le principe sur lequel est fondé les expériences et le principe des trois faisceaux constitués par les électrons, les atomes et enfin le laser. C'est à l'aide du laser $\mathbf{Co_2}$ qui permet de voire clairement apparaitre le gain et la perte d'un photon du laser dans le spectre en énergie des électrons diffusés, que les premières expériences qui ont été réalisées en 1976 [164] l'ont démontré. Puis en 1977 [165] ils ont observé les processus multi photoniques, où il y'a présence de pics sur le spectre qui correspond à l'énergie de l'absorption ou de l'émission d'un petit nombre de photons. Les premiers travaux théoriques menés par N.M Kroll et K.M Watson [166] ont donné des sections efficaces différentielles de diffusion inélastique quantique et classique. Donc, la connections quantique est négligeable lorsque les effets multi photoniques sont dominants et cela pour l'approximation des petites fréquences de laser ou d'un faible potentiel de diffusion. Cependant la majorités des approches classiques, quantique ou bien même basé sur un traitement explicité de la dynamique de diffusion électron-ion via des interactions élastiques et instantanées [167] dont la section efficace différentielle [168] est la base de la description de l'échange d'énergie qu'il y'a entre les photons et les électrons, régissent de l'approximation classique des petits angles de diffusion et des petits transferts d'impulsion ou de l'approximation de Born qui est sont équivalent quantique . Récemment, ils ont démontré [169] que l'augmentation très importante dans les taux de chauffage plasma est due à trajectoires électroniques irrégulières combinées à des champs laser haute fréquence et un champ coulombien, ce qui remit en doute la validité des approximations précédentes. Ce domaine de recherche doit donc se développer dans le contexte de la physique des plasmas.

II.4.2.7. Absorption collisionnelle-Bremsstrahlung inverse

Au sein du plasma, l'origine principale du mécanisme d'absorption collisionnelle est les collisions électrons-ions. L'électron per son énergie peut à peut par collision lorsqu'il oscille dans un champ laser. Ce mécanisme porte le nom du « Mécanisme de Bremsstralung inverse » à cause du principe sur lequel il est basé et qui est l'inverse de celui responsable du ralentissement et de la déviation d'une particule chargée dans un champ coulombien. L'expression de la perte d'énergie de l'impulsion laser est : [170].

$$v = \frac{\omega_{pe}^2}{(\omega_{pe}^2 + k^2c^2)} . v_{ei} \qquad \text{(II.21)}$$

En utilisant de simples considérations concernant la fréquence des collisions et dans le cas d'un électron de vitesse thermique $\boldsymbol{v_{th}}$ qui entre en collision avec un réseau d'ions d'une densité $\mathbf{n_i}$, on peut exprimer la fréquence de collision comme $\boldsymbol{v_{ei} \sim n_i \sigma v_{th}}$ **avec** $\boldsymbol{\sigma \sim \pi b^2}$, la section efficace de collision et **b**, la distance pour la quelle l'énergie potentielle et l'énergie cinétique sont égaux, donc $\frac{\boldsymbol{Ze^2}}{\boldsymbol{b}} \simeq \frac{\boldsymbol{m_e v_{th}^2}}{\boldsymbol{2}}$, ainsi

$$v_{ei} = \frac{4(2\pi)^{0.5}}{3} \frac{n_e . Z . e^4}{m_e^2 v_{te}^2} ln\Lambda \simeq 3.10^{-6} . \frac{Z . n_e . ln\,\Lambda_{ei}}{T[eV]^{3/2}} \qquad \text{(II.22)}$$

lnΛ : logarithme coulombien qui détermine le rapport entre les paramètres d'impact maximal et minimal.

$$\Lambda = \frac{b_{max}}{b_{min}} = \lambda_D \frac{K_B T_e}{Ze^2} = \frac{9N_D}{Z} \qquad \text{(II.23)}$$

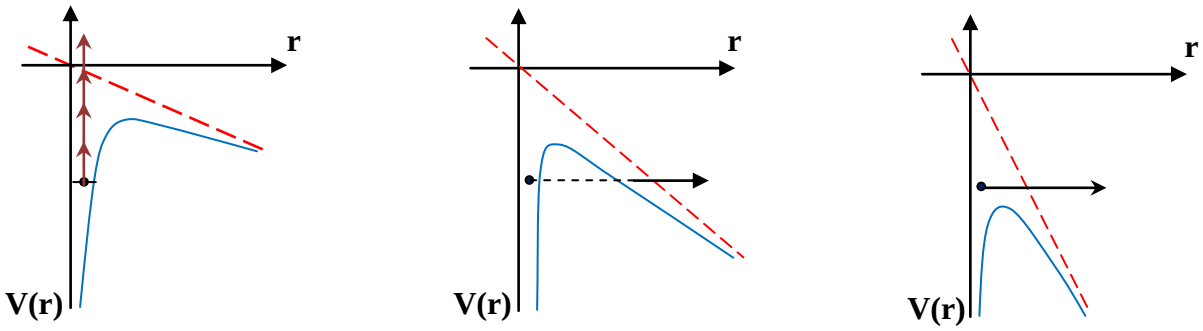
II.4.2.8. Les différents mécanismes d'ionisation par effet de champ

Puisque les atomes qui composent l'agrégat, baignent dans un champ électrique, leur interaction avec un champ E peut causer l'éjection d'un électron. Selon l'intensité de ce même champ il existe différents mécanisme d'ionisation. La figure II.3 illustre ces différents processus selon un éclairement croisant.

a) *Ionisation par effet multi-photonique*

b) *Ionisation par effet tunnel*

c) *Ionisation par suppression de barrière*



(—) : Potentiel colombienne. (- -) : Potentiel électrique.

Figure II.3 *: Schéma des différents processus d'ionisation par effet de champ.*

a) Ionisation par effet multi-photonique

Lorsque l'éclairement est faible, l'ionisation s'effectue par effet multi-photonique. L'électron lié va absorber plusieurs photons et lorsque l'énergie $\mathbf{N\hbar\omega}$ des N photons absorbés est plus élevée que le potentiel d'ionisation $\mathbf{I_p}$ de l'électron, ce dernier est ionisé et emporte l'énergie en excès [171]. (Voir la figure II.3.a).

b) Ionisation par effet tunnel

Quand l'éclairement augmente, le champ électrique se rapproche de l'ordre de grandeur du champ coulombien qui lie entre l'électron et son atome parent. La figure II.3.b) représente le potentiel du champ qui influe sur l'électron. Si on applique un champ extérieur la barrière de potentiel va s'abaisser et l'électron avec son énergie pourra enfin la franchir par effet tunnel. Si le champ électrique est d'une nature oscillante, alors la barrière aura tendance à s'abaisser et à monter-périodiquement. Si la période de ce champ est grande par rapport au temps de traversé de la barrière, avant même que le champ varie l'électron sera déjà émis. On appel ceci l'approximation quasi-statique, pour laquelle l'ionisation s'effectue par effet tunnel. Par contre, si le temps de traversée est long par rapport à la période du champ, l'ionisation s'effectuera par effet multiphotonique [171].

c) Ionisation par suppression de Barrière

Lorsque l'intensité atteint des valeurs plus grandes, le champ électronique va entièrement éliminer la barrière et l'électron sera éjecter directement dans le continuum, cette effet est connue sous le nom d'ionisation par suppression de barrière (BSI).

On peut estimer l'importance de ces différents régimes d'ionisation en fonction de l'éclairement laser, la limite entre l'ionisation multi-photonique et par effet tunnel est exprimée par le paramètre adiabatique de Keldych.

$$\Gamma = \frac{\omega}{E}\frac{\sqrt{2m_e I_p}}{e} \qquad \text{(II.24)}$$

Où ω et E sont respectivement la pulsation et l'amplitude du champ électrique. Le régime multiphotonique est favorisé pour $\boldsymbol{\Gamma \gg 1}$, soit pour un champ faible et une fréquence du laser élevée. Lorsque le paramètre de Keldysh satisfait $\boldsymbol{\Gamma \ll 1}$, l'ionisation peut être décrite par effet tunnel, ce qui correspond à un fort éclairement laser et une fréquence optique faible.

Il est possible d'évaluer classiquement la limite où le champ devient suffisamment élève pour compenser la barrière coulombienne [171]. En considérant un potentiel unidimensionnel, l'électron va ressentir un potentiel total qui est la somme entre le potentiel colombien et le potentiel électrique et qui prend la forme :

$$V(x) = \frac{-Z}{4\pi\varepsilon_0|x|} - Ex \qquad \text{(II.25)}$$

Où Z, la charge de l'atome (ou ion) parent.

On peut donc, et à partir de cette équation calculer la valeur x_{max} pour la quelle le potentiel sera maximal. Cette valeur vaut $x_{max} = (Z/(4\pi\varepsilon_0 E))^{1/2}$, en ce point le potentiel est $V(x_{max}) = -2\left(ZE/(4\pi\varepsilon_0)\right)^{1/2}$. Ce qui nous laisse la possibilité de déterminer un champ seuil E_{seuil}, un champ minimum pour lequel l'électron peut se libérer du champ coulombien. Pour une telle valeur du champ, le potentiel en x_{max} est égal à l'énergie d'ionisation $-I_p$ de l'électron :

$$E_{seuil} = \frac{4\pi\varepsilon_0 I_p^2}{4Z} \qquad \text{(II.26)}$$

Ainsi, lorsque la valeur du champ est inferieur à cette valeur, l'ionisation s'effectue par l'effet tunnel et si au contraire cette valeur se trouve être supérieur ou égale, alors l'électron est libéré par suppression de barrière [171].

II.4.2.9. L'émission thermique

Lorsqu'un agrégat absorbe un photon dont l'énergie est proche de la fréquence de Mie $\hbar\omega_{Mie}$, il cause l'excitation du plasmon. Le couplage du mode plasmon aux états 1-particule trou (1ph) va amortir le mouvement collectif de la densité électronique. La cohérence initiale de ses oscillations est rapidement perdue et les oscillations sont vite déphasées puisque les états 1ph ont des différents modes propres. À l'instant où la cohérence des oscillations collectives des électrons est perdue, le plasma se couple par l'intermédiaire des collisions alors on aura la transformation de l'énergie du photon absorbée en énergie thermique. Donc une fois que les électrons soit thermalisés ils auront une énergie supérieur à celle du potentiel d'ionisation I_p, ainsi ils peuvent se détacher de l'agrégat. On parle alors d'une émission ou d'évaporation thermique [154].

Dans la physique du solide, on décrit le processus de l'émission spontanée d'électron d'un corps chaud, via l'équation de Richardson-Dushman (effet thermo-ionique). Dans les agrégats, divers autres processus de perte d'énergie comme l'évaporation d'atomes ou de fragments (dimères, trimères) ou aussi la radiation du corps noir, entrent en concurrence avec l'émission thermique, par conséquent cette dernière n'est observable que si les autres processus sont peu probables, comme dans le cas d'une énergie de dissociation élevée. Donc on peut observer l'émission thermique dans les fullerènes [172] ou bien les métaux qui possèdent une haute température de fusion, contrairement au Sodium qui a une énergie de dissociation faible, cause pour laquelle l'évaporation de fragments atomiques est le processus de désexcitation dominant au sein d'un agrégat de sodium chaud. Mais l'utilisation d'un laser femtoseconde permet de faire apparaitre de l'émission thermique. En effet, si une énergie assez suffisante dans un laps de temps assez court et inférieur au temps caractéristique de la réponse ionique, le système se refroidira par émission thermique électronique. L'application de ce phénomène réside dans le temps caractéristiques des divers processus cités précédemment. Lors d'une excitation par un laser femtoseconde, le plasmon va transférer rapidement l'énergie qu'il a absorbé aux degrés de liberté électronique par la fragmentation de Landau et les collisions électron-électron pour en suite et après 10 fs obtenir un système électronique fortement excité est en déséquilibre avec le système ionique froid, à condition que le temps caractéristique de couplage électron-ion reste plus grand que le temps caractéristique de thermalisation. Le système électronique est alors dans un état de quasi-équilibre thermique. Une fois que les électrons ont une énergie suffisamment élevée pour vaincre le potentiel d'ionisation, ils peuvent alors quitter l'agrégat. L'équation de Weisskof

[173] donne le taux d'émission, qui dans le cas d'un petit agrégat métallique peut se mettre sous la forme [174].

$$\tau_{evap}^{-1} = \frac{2m}{\hbar^3\pi^2}\sigma_{geo}^{corr}\left(\frac{E_{th}-I_p}{a}\right)exp\left(-I_p/\sqrt{\frac{E_{th}-I_p/2}{a}}\right), a = \frac{\pi^2 N_e}{4E_f} \quad \text{(II.27)}$$

Où $\boldsymbol{\sigma_{geo}^{corr}}$: section efficace géométrique ($\boldsymbol{\pi R_0^2}$), corrigée par le potentiel de surface $\boldsymbol{V(R_0)} \simeq -\frac{\boldsymbol{e^2}}{\boldsymbol{R_0}}$ de l'agrégat**.**

$$\sigma_{geo}^{corr} = \pi R_0^2\left(1 - V(R_0)\sqrt{\frac{a}{E_{th}-I_p}}\right) \quad \text{(II.28)}$$

Si la température de Fermi est plus élevée que la température **T** propre au nuage électronique thermalisé, Alors l'énergie thermique est approximativement proportionnelle au carré de la température $\mathbf{E_{th} = a(K_B T)^2}$**.** Donc l'équation (II.30) peut être exprimée en fonction de la température K_BT.

II.4.2.10. L'émission directe

Lorsque l'intensité du laser dépasse une certaine valeur, l'émission directe c'est-à-dire l'émission de photoélectron va remplacer l'émission thermique. Plus souvent, l'émission directe est très violente et elle s'effectue sur un temps très court. D'un point de vu quantique, l'émission direct est définit comme suite : une fois qu'un électron absorbe un photon il passe à un état plus bas et il émet un photon ou alors il va absorber un autre photon où plusieurs autres jusqu'à ce qu'il a assez d'énergie pour qu'il puisse s'échapper du système de la même manière. Lorsque les photons sont absorbés par le plasmon leur énergie, qui est égale à $N\hbar\omega$, N nombre de photons absorbés, est de suite transférée à un seul électron. Si son énergie est plus grande que le potentiel d'ionisation, l'électron va quitter l'agrégat avec une énergie cinétique qui représente la somme de l'énergie des photons et l'énergie initiale. Donc l'émission directe est liée à l'absorption multi-photonique, respectivement excitation multi-plasmon ou bien d'une manière plus précise, à l'amplitude dipolaire électronique. Ainsi et d'après le model de Drude, elle devrait être bien évidente dans le cas de la résonance [154].

II.4.2.11. Résultats expérimentaux

a) Mise en évidence de l'émission X : mesures spectrales

La mesure du premier spectre d'émission d'un jet de gaz partiellement composé d'agrégats de Krypton irradiés par une impulsion laser ($\lambda = 248\,nm$, $\tau = 300fs$, I_0= 17 W.cm^{-2}) à été

réalisée par A. Mc Pherson et collaborateurs en 1994 c'est au tour de 6A° (~ 2 keV) qu'on identifia le rayon X des états de charges très élevés (Kr^{q+}, q = 24 – 27), c'est l'année qui la suivi que l'équipe de T. Ditmire a confirmé que l'émission des Rayon X observé était dû à la formation d'agrégats dans le jet de gaz [115]. T. Ditmire et ces collaborateurs ont aussi mis en évidence l'importance des collisions électron –ion dans la dynamique pour des gros agrégats ($R_0 \sim 100A°$) : en effet, dans les conditions d'éclairement considéré, l'ionisation optique par le champ laser ne permet pas d'obtenir les degrés d'ionisation très élevés. C'est pour cela que beaucoup d'autres supposent qu'au cour de l'interaction, nombreuses collisions se produisent créant ainsi d'importants états de charge et des lacunes en couches profondes. Divers autres expériences qui ont mis en évidence une émission X/XUV qui vient de lacunes des couches K, L, et M d'ions multichargés d'argon et de krypton, et en couches L et M pour des agrégats de xénon [171].

Les expériences faite sur les agrégats d'argon (de 10^4 à 10^6 atomes par agrégat) à l'aide d'un laser de 130 fs et d'une intensité crête de 5.10^{17} W.cm^{-2} qui donne une valeur égale à 3.14 KeV a permi de produire un rayonnement X et qui correspond à la transition 2p→1s de l'Ar^{16+} [119] en plus l'équipe composée de Dobosz et ces collaborateurs a démontré que le rayonnement est émis d'une manière isotrope ce qui veut dire que la réabsorption des photons X par le milieu est très faible [118].

Jusqu'à maintenant, l'étude effectuée par R. Issac et collaborateurs qui ont focalisé une impulsion laser de 60 fs et d'une intensité crête de $1{,}3.10^{18}$ W.cm^{-2} dans un jet d'agrégats de Krypton ($R_0 \sim 18nm$) a donné les photons les plus énergétiques [175].

b) Emission de rayonnement dans l'extrême ultraviolet (EUV)

La lithographie en micro-électronique a besoin de source de rayonnement dans l'extrême ultraviolet, ce qui pousse les chercheurs à se focaliser sur le développement de ces derniers. La lithographie est une technique qui sert à graver des composants de dimension de plus en plus petite dans le but de créer des puces plus performantes. Selon la longueur d'onde utilisée, la taille minimale accessible varie. En ce moment, la lithographie utilise une longueur d'onde égale à 248 nm. La longueur visée par les chercheurs est de 154 nm mais dés à présent, différentes études sont réalisées dans le but d'y arriver à des sources XUV à 13,4 nm. L'interaction d'une impulsion laser avec un agrégat de gaz rare présente de caractéristiques encourageantes :

L'absence de débris et son utilisation à haute cadence. La caractérisation et l'optimisation de ces sources a fait l'objet de recherches de plusieurs équipes. L'influence de la durée d'impulsion laser de 50 mJ sur l'émission EUV dans une gamme spectrale de 2 à 44 nm pour des agrégats de Krypton et d'argon d'environ 10^7 atomes [6] à été étudiée par E. Parra et ces collaborateurs pour des intensités brève (entre 100 et 300 fs) le rayonnement EUV est plus intense.

S. Te-Evetisyan et collaborateurs ont mesuré le nombre de photons produit entre 10 et 15 nm dans des agrégats de Xénon (10^5- 10^6 atomes) avec une énergie de 200 mJ [176]. Ils ont constaté qu'une émission plus importante peut être atteinte s'ils utilisent une impulsion de 2 ps et une polarisation circulaire du champ laser. C'est les ions de Xe^{q+} qui sont responsable de l'EUV quand q $\in$ (9-11). Une taille optimale de l'agrégat à été mise par S.Ter-Auetisyen et collaborateur pour la production de rayon EUV. Des données obtenues dans le cadre de l'émission X peuvent êtres utilisées pour l'interprétation de ces résultats.

On n'a constaté que l'émission X provenant d'états de changes très élevés et important lorsque le nombre d'atomes qui compose l'agrégat augmente. Donc, dans le cas d'un gros agrégat, les états de charge intermédiaire responsables de l'émission EUV sont complètement dépeuplés et l'émission est avantagée au détriment du rayonnement à plus basse énergie.

À l'aide de trois lasers différent, l'équipe de K. Kondo a pu étudier l'émission EUV dans une gamme allant de 5 à 18 nm provenant d'agrégats de Xénon composés de 10^6 atomes. Le but de l'utilisation de 3 lasers est de faire varier la longueur d'onde, l'énergie sur cible et la durée d'impulsion [177]. Avec une impulsion de 500 fs et 24 mJ à 248 nm, et dans la gamme considérée l'efficacité de conversion de l'énergie laser maximum obtenu est de 10%.

c) Émission des particules

À travers les résultats expérimentaux obtenus, ils ont pu démontrés que la présence d'agrégats dans un jet de gaz irradié par un champ laser provoque une absorption quasi-totale de l'énergie présente dans l'impulsion initiale via les processus non linéaire (désexcitation radiative, bremsstrahlung, recombinaison à trois corps), une partie de l'énergie est réémise sous forme de rayonnement énergétique. Par contre l'autre partie d'énergie qui est absorbe par les particules composantes l'agrégat peut être convertie en énergie cinétique. Dans le but de créer des ressources de particules rapides et aussi pour comprendre encore plus la dynamique de l'interaction laser-agrégat. Quelques expériences se sont concentrées sur l'étude de la détection et la distribution en énergie des particules émises [171].

c.1) Electrons

Les ions multichargés sont la source de l'émission X lors de l'irradiation de l'agrégat de gaz rare par une impulsion laser intense et brève. Ce qui veut dire qu'au moment de l'interaction un bon nombre d'électrons est libéré.

L'étude spectroscopique des électrons par des agrégats de Xénon ($R_0 \sim 55A°. 1000 - 2000\ atomes$) excité par une impulsion d'une durée de 150 *fs* et d'une intensité crête 10^{16} W.cm^{-2} a été réalisé par Y. Shao et collaborateurs [10] ; à partir de la distribution d'énergie, on put constater deux contributions

- Le premier pic d'électrons, caractérisé par une énergie comprise entre 0,1 et 1000 eV, ces électrons sont qualifiés de tiède par Y.Shao et collaborateurs.
- Le deuxième pic d'électrons a une énergie comprise entre 2 et 3 KeV, ces électrons sont appelés « électrons chauds »

Ces résultats sont totalement différents par rapport aux solides : pour des telles intensités, dans le cas d'irradiation de cibles solides, la température atteinte est de l'ordre de quelques centaines d'eV [178]. Ceci vient de la perte d'énergie par conduction dans le matériau froid qui entoure la zone. Par contre, il est possible d'obtenir des températures beaucoup plus importantes, si la densité atomique moyenne est faible, de telles sortes qu'elle limite ces pertes.

Les auteurs ont observé lors de l'étude de la distribution angulaire des électrons qui viennent des agrégats, que les électrons tièdes sont émis dans l'axe de polarisation du laser d'une même façon que les électrons sont arrachés par ionisation optique des atomes seuls. Cependant la largeur à mi-hauteur de la distribution ($\sim 60°$) est plus grande que celle obtenue pour un gaz monoatomique ($\sim 20°$). Cette différence indique que l'origine des électrons tiède n'est pas seulement l'ionisation par effet de champs mais aussi des collisions électron-ions qui rendent l'émission isotrope, contrairement au électron chauds qui ne présentent aucune direction d'émission préférentielle. Ceci indique, qu'avant d'être éjectés de l'agrégat, les électrons subissent un grand nombre de collisions [171].

Autres expériences contredisent ces résultats par exemple, V. Kumarappan et collaborateurs ont observé une distribution électronique à une seule composante, d'une énergie allant de 0 jusqu'à 5 KeV [179]. Cette même contradiction a été obtenu par E. Springate et collaborateurs qui ont constaté quelque soit le gaz utilisé et quelque soient les conditions expérimentales, il n'y a jamais apparition du second pic d'électrons « chauds » de nombreuse hypothèses ont été dites pour essayer d'expliquer cette différence. Parmi elles on trouve la mauvaise

interprétation faite par Y.Shao des traces du temps de vol mesuré. Il est aussi à noter que les agrégats utilisés lors de ces expériences sont de tailles différentes (2500 atomes/agrégat dans les expériences d'Y.Shao et entre 104 et 106 pour celle de K.Kumarappan et E. Springate [180]).

Pour le pic d'électrons à basse énergie (électrons tiédes). Y.Shao et collaborateurs ainsi que E. Springate et collaborateurs et V. Kumarappan et collaborateurs sont arrivés au même résultat, l'émission d'électrons est favorisée dans la direction de polarisation du laser, et le pic d'émission est plus large que dans le cas d'atomes isolés.

L'interaction laser-agrégat possède des caractéristiques importantes à la production d'électrons énergétiques, compte tenu des températures électroniques obtenues. E. Springate et V. Kumarappan se sont intéressés à l'optimisation de cette source de particules. Pour une énergie laser et une taille d'agrégat précise, ils ont observé une durée d'impulsion optimale pour la quelle la population d'électrons émise est la plus énergétique.

c.2) Ions

En parallèle avec l'émission d'électrons, quelques expériences se sont intéressées à l'étude de l'étude de la distribution énergétique des ions générés lors de l'interaction laser-agrégat. L'irradiation d'agrégats de Xénon composés de 2500 atomes de rayon $R_0 \sim 65 \pm 5$ A° avec une impulsion de 150 fs et une intensité crête de 2.10^{16} W.cm^{-2}, a permis à T.Ditmire et ces collaborateurs d'observer une émission isotrope des ions de Xe^{+q} d'énergie égale à 1 MeV et dont la charge q maximale est de 40 [181]. M. Lezius et collaborateurs ont obtenu aussi une énergie ionique maximale de l'ordre du MeV mais en utilisant des caractéristiques différentes du laser (τ_{FWHM} =130 fs, I0= 5.10^{17} W.cm^{-2}) et des agrégats de xénon beaucoup plus remplie (2.10^6 atomes) [182].

L'irradiation par une impulsion laser (τ_{FWHM}=130 fs, I_0= 2.10^{16} W.cm^{-2}) des agrégats d'argons de 12800 atomes faite par M. Hirokane et collaborateurs, a donné des ions dont l'énergie est de l'ordre de 800 KeV [183]. Contrairement à T. Ditmire qui dit que les ions les plus énergétiques et les plus chargés sont émis dans la direction de polarisation du laser (émission anisotrope) en plus; M. Hirokane et collaborateurs ont trouvé une dépendance en fonction de la taille des agrégats (plus le rayon de l'agrégat est grand plus l'énergie ionique maximale est élevée).

II.5. Conclusion

Dans ce chapitre, on a cité les définitions des lasers femtosecondes, puis on a parlé de l'interaction de ce type de laser avec les agrégats métalliques et cela en revoyant les différents mécanismes qui surgissent lors de cette interaction pour en suite finir par citer les différents résultats et expériences trouvées jusqu'à présent dans ce domaine.

Chapitre 3

Modèle nanoplasma

III.1. Introduction

Le modèle nanoplasma donne un accès direct à l'évolution temporelle simultanée de différentes propriétés de l'agrégat, par exemple son rayon, le nombre et la température des électrons libres qui le constitue, la charge de chacun des atomes, le nombre et l'énergie des électrons émis, la densité électronique et ionique, etc… Dans ce chapitre, et après avoir donner un petit aperçu sur la modélisation de l'interaction ainsi que les divers modèle existant, on va revoir les différents propriétés et mécanismes qui définissent le modèle nanoplasma qu'on a utilisé pour l'obtention de nos résultats.

III.2. Modélisation de l'interaction

Les agrégats représentent un milieu intermédiaire entre les atomes et les solides. À comparer avec la longueur d'onde du laser utilisé (800 nm), la dimension de l'agrégat est très petite (≈ qqs nm). D'un point de vue théorique, elle leur confère des nouvelles propriétés intéressantes à étudier. Afin d'interpréter les différents résultats obtenus, divers modèles inespérés des propriétés de la matière déjà connus à l'état solide ou gaz ont été proposés. Ces modèles sont basés sur différentes hypothèse le plus souvent basés sur les expériences réalisées dans le domaine de l'interaction laser-atomes. Dans ce qui suit on va voir les différents modèles développés et les principaux résultats obtenus, via ces derniers [171, 184].

III.2.1. Modèle CEMM (Cohérent Électron Motion Model)

A.Mc Pherson et coll. ont développé le premier modèle pour expliquer la diffusion X « anormale » lors de l'irradiation de l'agrégat par une impulsion laser [9]. Ils prétendent que des électrons libres sont générés par les premières atomes ionisés, puis ces électrons sont accélères par le champ électromagnétique à l'intérieur de l'agrégat. En couche interne, des lacunes sont susceptibles d'être crée par les électrons qui sont suffisamment énergétique et entre en collision avec les atomes ou ions voisins. La désexcitation radiative d'un électron d'une couche externe qui est associée à l'émission d'un photon énergétique, peut combler les lacunes. Ce modèle utilise une gamme d'éclairement laser bien précise : l'intensité doit être assez importante pour que les électrons accélérés aient assez d'énergie pour ioniser les couches internes mais elle ne doit pas être trop élevée pour éviter que les couches externes ne soient complètement ionisées.

Peu de temps après, la même équipe a trouvé que les N électrons libres sont considérés comme étant un ensemble oscillant de manière cohérente dans le champ laser (modèle

CEMM). Donc on peut considérer le comportement de cet ensemble comme étant celui d'une « quasi particule » unique de charge $\mathbf{N_e}$et de masse $\mathbf{N_{me}}$. Par analogie à l'ionisation par impact électronique, l'ionisation collisionelle entre les ions (ou atomes) de l'agrégat et cette « quasi-particules », donne des états de charges plus élevés. Un fort couplage avec l'onde électromagnétique est aussi induit par le mouvement collectif. La probabilité d'éjection de plusieurs électrons en couche interne ainsi que celle d'un seul électron est de même importance. Le taux d'émission x est alors largement accru. Ce modèle est en accord satisfaisant avec les résultats expérimentaux mais juste dans le cas de petits agrégats (R ≈ qqs angström) [185].

III.2.2. Modèle d'ionisation classique (Ionisation Ignition Model)

Rose- Petruck et all ont développé un modèle d'ionisation de l'interaction laser-agrégats appelé (Ionisation Ignition Model) [186]. Ce modèle regroupe l'ensemble des trajectoires classiques électroniques et ionique tout au long de l'impulsion laser. Cette approche suppose que le champ laser arrache les premiers électrons de l'atome via la suppression de la barrière de potentiel. Le potentiel d'ionisation des ions est écranté par le champ électrique qui domine dans l'agrégat (lié à la densité et au champ laser) ce qui cause une ionisation plus rapide et à des états de charge plus élevés comme c'est observé dans les résultats expérimentaux [187, 188]. Donc des lacunes au niveau des couches K et L, des ions, sont causées par les électrons qui ont une énergie assez suffisante, ce qui conduit à l'émission de rayonnement X. Sous l'action de la répulsion coulombienne, l'agrégat se détend.

Rose-Petruck c'est limite à l'étude des petits agrégats ($\mathbf{Ne_{25}, Ne_{55}}$ **et** $\mathbf{Ar_{25}}$**)** lors des simulations qu'elle a réalisé. Les résultats qu'il a obtenu en utilisant une impulsion de 15 fs de durée centrée à 800 nm et avec une puissance crête égale à 5.10^{17} W.cm^{-2} prouvent que si la durée de l'impulsion est plus grande, l'ionisation moyenne issue du chauffage des électrons par le champ laser est plus faible.

L'utilisation de ce type de modèle permet d'obtenir de bon résultats en ce qui concerne les états de charge obtenus (pour la couche M de l'argon) et les énergies cinétique moyennes des ions calculés sont très proches des résultats obtenus expérimentalement par Purnell et al [188]. Parmi les désavantages de ce modèle on cite ; l'absence de considération de l'ionisation tunnel, la limité de la taille des agrégats et la réponse du modèle à une impulsion plus longue.

III.2.3. Modèle nanoplasma

Contrairement aux autres modèles, certaines auteurs ont tenté de modéliser l'interaction laser-agrégat en utilisant une description inhérente à la physique des solides ou des plasmas la réponse de l'agrégat peut être modélisé. Donc on peut considérer l'agrégat comme étant un ensemble réagissant globalement à l'impulsion laser pour la validation de cette description statistique, les agrégats utilisés doivent être de grande taille.

Le modèle nommé « Modèle nanplasma » a été développé par T. Ditmire et coll. [117] en considérant l'agrégat comme étant un plasma sphérique d'une taille nanométrique, le modèle nanoplasma décrit la dynamique de l'ionisation du chauffage et de l'expansion de la cible.

L'équipe de T. Ditmire et ces coll., considère que la distribution des électrons est isotrope et maxwellienne, et cela est dû à la densité élevée à l'intérieur de l'agrégat (proche de celle d'un solide) ce qui induit des taux collisionnels très importants. La répartition des électrons est considérée comme étant uniforme. Par conséquent l'agrégat est modélisé par un plasma homogène, avec une densité et une température électronique qui ne dépendent que du temps.

L'agrégat est supposé comme une sphère diélectrique dans le bute de prendre en compte l'absorption de l'énergie laser. L'utilisation de cette hypothèse permet de calculer le champ interne qui présente une résonance quand la densité électronique n, atteint une valeur égale à trois fois la densité critique $\mathbf{n_c}$, définit dans un plasma :

$$n_c = \frac{m_e \varepsilon_0 \omega_0^2}{e^2} \qquad \text{(III. 1)}$$

De cette remonté, il en résulte une forte absorption de l'énergie laser par bremsstrahlung inverse. L'éjection d'électrons énergétiques en dehors de l'agrégat est considérée comme étant un défaut de charge qui est à l'origine de la pression coulombienne qui participe à l'expansion de l'agrégat avec la pression hydrodynamique, qui provient de la conversion de l'énergie thermique électronique en cinétique ionique.

Le modèle nanoplasma met en évidence l'importance des collisions électrons-ions. Le mécanisme d'ionisation optique via le champ laser qui permet de générer les premiers électrons qui en suite vont acquérir de l'énergie par bremsstrahlung inverse et percuter les ions (ou atomes) environnants ; induisant ainsi en quelques centaines de femtosecondes un degré très élevé d'ionisation au sein de l'agrégat. Alors les électrons libres deviennent très énergétiques et peuvent quitter l'agrégat. En fin, sous l'effet des deux pressions coulombienne et hydrodynamique combinées ensemble, l'agrégat explose.

E. Springate et coll sont arrivé à reproduire les variations de l'émission d'ions énergétiques en fonction de la taille des agrégats ainsi que des différents paramètres du laser et cela en utilisant le modèle plasma [189].

H. Milchberg et coll. Ont étendu ce modèle en ajoutant une dépendance radiale de la densité électronique [190]. Les auteurs observent toujours que pour une valeur $\mathbf{n_e = n_c}$ il se produit une absorption résonante en prenant compte le gradient de densité, ceci signifie que seulement pour une couche de l'agrégat bien spécifique la résonance se produit à un temps « t » donné. L'absorption pour différentes couches du plasma en fonction du temps croit lorsque le rayon de l'agrégat augmente. Par conséquent, et contrairement au cas uniforme où la résonance est très brève, l'énergie laser est fortement absorbée tout au long de l'impulsion laser.

III.2.4. Autres Modèles

- ✓ Last et Jortmer ont réalisé des simulations sur l'explosion coulombienne des agrégats de $\mathbf{Xe_n}$ et d'Ar_n avec n < 60 atomes basées sur des calcules de dynamique moléculaire [191]. Ils ont étudié l'ionisation multiphotonique des atomes puis ils ont observé la vitesse finale des ions. Pour l'argon, les états de charges obtenus sont 6^+. En utilisant une approche monodimensionnelle ce même modèle à été étendu à des agrégats plus gros de $\mathbf{Xe_{1000}}$ [192]. Cette extension à permet de voir que les électrons passait une à deux fois dans l'agrégat avant d'être éjecter par le champ laser. Ce nombre de passage est proportionnel à la charge de l'agrégat. Pour prendre en compte le mouvement des électrons et ions, ils ont étendu ce modèle à 3 Dimensions [193] une quasi-résonance des électrons libres qui oscillent avec une fréquence du même ordre que celle du laser, est observé lors des simulations menées sur les agrégats Xe_{55} et Xe_{1061} . Ceci donne des énergies électroniques et ioniques plus importantes. C'est au cours de l'explosion coulombienne que s'effectue l'éjection des électrons de l'agrégat. Une étude de la dynamique d'agrégat de Xe_{n1} de D_{2_n} et de $(CD_4)_n$ (n = 55 – 1061) a été effectué par Last et Jortner [194]. Ils se sont approfondis dans les phénomènes d'ionisation et surtout la dynamique des électrons, et l'influence de la forme temporelle de l'impulsion sur cette dynamique.
- ✓ D'un autre coté, Krainov et Roshchupkin ont simulé l'explosion coulombienne d'agrégats de Xe_{1000} en utilisant une impulsion laser de 100 fs et de 10^{16} W.cm^{-2} [195]. Ils décrivent pas à pas l'expansion de l'agrégat une fois que les ions soient ionisés par le champ laser. Les électrons libres sont éjectés et sous l'effet de la charge d'espace on aura la répulsion des ions

entre eux, puis une ionisation complémentaire par le champ. Les résultats expérimentaux obtenus par Springate est en bon accord avec l'énergie maximum atteinte par les ions [189].

- ✓ à l'aide d'une impulsion laser de 10^{16} W.cm^{-2}, Sakabe et al. ont pu simuler l'explosion d'agrégats d'hydrogéne de rayon de 4 à 8 nm [196]. Les résultats obtenus ont montrés une émission de protons jusqu'à 8 KeV d'énergie qui varie avec la variation de l'intensité laser ainsi que le rayon moyen de l'agrégat. Ces résultats sont parfaitement compatibles avec ceux obtenu expérimentalement par Zweiback et all et Mendhan et all [197, 198].
- ✓ Afin de mieux comprendre l'interaction laser-agrégat d'autre modèle ont vu le jour. Ditmire à notamment réalisé des simulations à partir du code particulier (code PIC : Particule In Cell), et cela en utilisant des agrégats de petites tailles (55 at/agrégat) [199]. Cette étude prend en considération l'évolution des ions et électrons aux cours de l'expansion, ainsi que les effets de l'ionisation par impact d'électrons. L'importance du confinement des électrons par la charge d'espace est soulignée par les simulations. Les états de charges obtenues sont en bon accord avec ceux mesurés par Purnell et all [188]. Des simulations en code PIC sur des agrégats d'hydrogènes de 500 nm de rayon irradiés par une impulsion de durée de 20 fs avec une intensité 10^{17} W.cm^{-2} ont été réalisés par Eloy et al. ils obtenaient aussi des énergies cinétiques ionique proportionnel à $I^{1/2}$ allant jusqu'à 3 MeV. Des simulations similaire en code PIC on été réalisées par Sakabe et al. le coût en temps de calcul pour ce modèle limite la taille de l'agrégat.
- ✓ En se basant sur le modèle de Thomas-Fermi, d'autres modèles ont été développé dans le but de simuler l'interaction laser- agrégat, et cela en utilisant des codes basés sur la théorie de la fonctionnelle de la densité dépendante du temps (TDFDT : Time Depondant Fonctional Density Theory) [200, 201]. Ces modèles sont juste qualitatifs et ne rendent compte des résultats expérimentaux. Comme nous l'avons vu dans les paragraphes qui précédent, il existe un bon nombre de modèles et codes qui visent à décrire l'interaction laser-agrégats mais, aucun d'eux ne prend en considération toutes les constatations expérimentales en même temps. A titre d'exemple, on prend les états de charge accessibles expérimentalement ne sont pas bien reproduis par les calculs selon le modèle choisie. Les mécanismes invoqués pour expliquer le couplage très fort entre le champ laser et les agrégats différent ; et des fois les modèle se trouve être contradictoire entre eux.

  Dans ces paragraphe qui suivent, nous allons décrire les mécanismes de l'interaction laser-agrégat qui constitues le modèle nanoplasma qui est choisit comme étant le modèle le plus proche à reproduire les résultats des expériences.

III.3. Présentation du modèle nanoplasma

III.3.1. Principe du modèle

Le principe sur lequel est basé le modèle nanoplasma est présenté sur la figure 2.1. Pour que les atomes qui composent l'agrégat soient ionisés, l'intensité du laser $\boldsymbol{E_{ext}}$ doit être assez suffisante (a). À l'intérieur de l'agrégat une polarisation **P** crée un champ électrique qui s'oppose au champ initial appliqué; ce champ résulte du déplacement de charges positives et négatives de leurs positions d'équilibre, sous l'action d'un champ laser (b). Les atomes de l'agrégat baignent dans le champ total résultant $\boldsymbol{E_{int}}$ qui est généralement réduit par rapport au champ externe. La collision entre les premiers électrons libres chauffés par Bremsstrahlung inverse (c) et les ions ou atomes au voisinage crée au sein de l'agrégat un degré très élevé d'ionisation (d) et cela en quelque femtoseconde. Ce dernier peut-être alors comparé à un plasma qui possède la même dimension que celle de la taille initiale de l'agrégat, c'est-à-dire une sphère de rayon de l'ordre de quelque centaine d'angströms. Les collisions qui se produisent absorbent l'énergie livrée par le laser pour en suite produire des électrons libres très énergétiques qui peuvent alors se détacher de l'agrégat (e). Il en résulte un excès de charges positives qui conduit à l'augmentation de la taille du plasma dû à la répulsion électrostatique des ions. La pression coulombienne ainsi que la pression hydrodynamique provenant de la conversion d'énergie thermique électronique en énergie cinétique ionique conduisant à une explosion finale de l'agrégat (f).

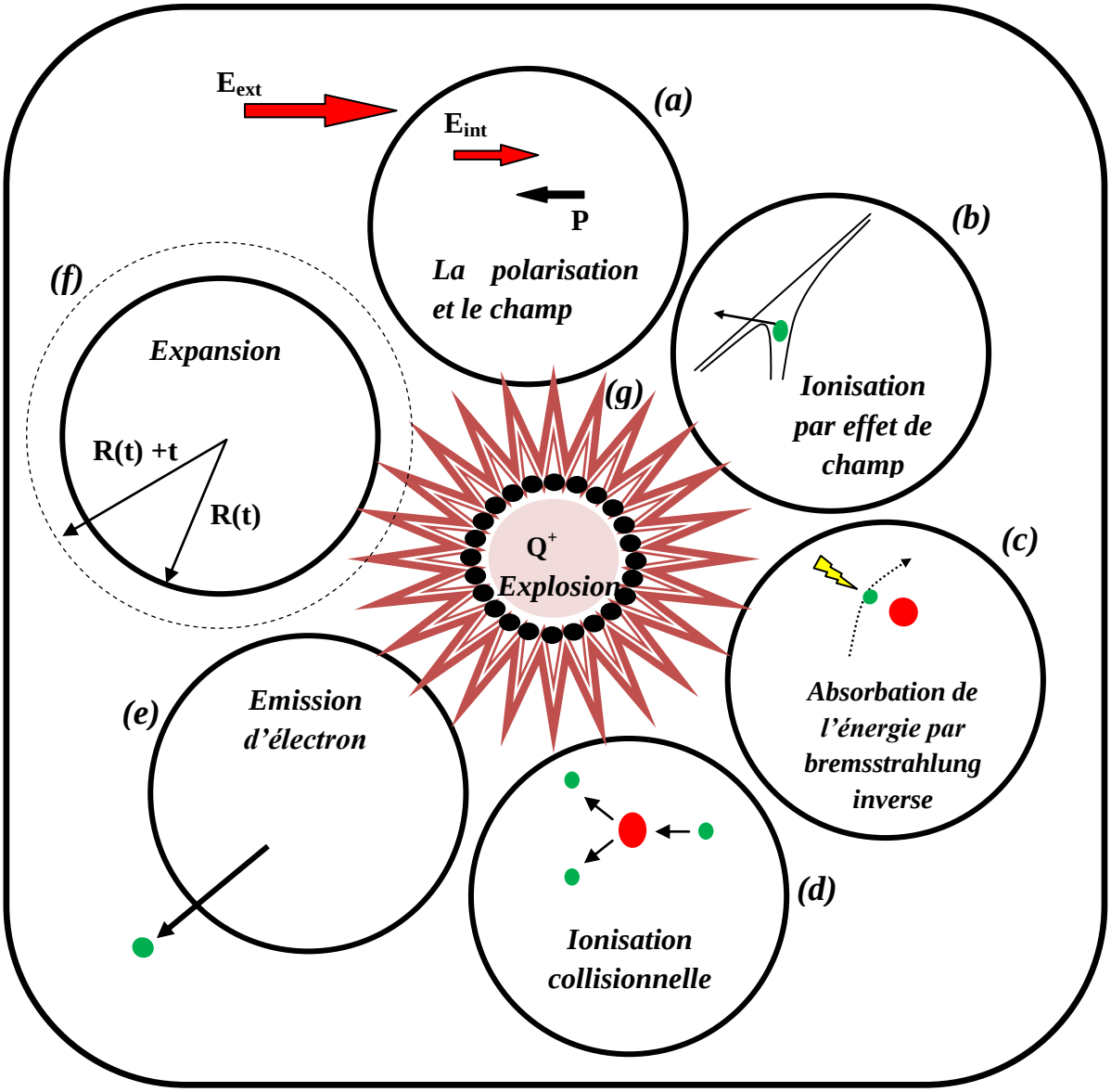


Figure III.1 *: Schémas représentant les processus pris en compte par le model nanoplasma : La polarisation et le champ à l'intérieur de l'agrégat(a), l'ionisation par effet de champ(b), l'absorption d'énergie(c), l'ionisation collisionnelle (d), l'émission électronique (e), l'expansion de l'agrégat (f).et finalement l'explosion de l'agrégat (g).*

III.3.2. Les hypothèses

Certaines hypothèses doivent être formulées pour mieux comprendre les processus pris en compte par le modèle nanoplasma qui permettent de déterminer l'évolution temporelle de l'agrégat. Il est important de connaitre le champ à l'intérieur de l'agrégat, en tout point de l'espace pour estimer le taux d'ionisation par effet de champs. Il est également nécessaire de connaitre la distribution spatio-temporelle et énergétique des électrons à chaque instant de l'évolution à fin de calculer les différents paramètres intervenant dans la dynamique (taux d'ionisation, taux d'émission électronique….) [171]. Dans le cas des agrégats composés

d'environs 10^4 atomes, les résultats des simulations de dynamique moléculaire ont donné une densité électronique interne qui peut atteindre 10^{22} à $10^{23}cm^{-3}$[202], grâce à ces valeurs élevés il est possible de déterminer les positions ainsi que l'énergie de chaque électron et c'est pour cela que certaines hypothèse sont inévitables.

1) La première hypothèse suppose que le champ électrique est uniforme à l'intérieur de l'agrégat. Pour la validation de cette hypothèse il faut divers conditions. Premièrement, le champ électromagnétique de l'impulsion laser influe sur le champ interne, c'est pour ça que tous les atomes qui composes l'agrégat doivent être irradiés par le même champ laser afin que le champ interne soit uniforme. D'un point de vue de l'approximation dipolaire électrique, dans le cas où la longueur d'onde $\boldsymbol{\lambda}$ de ce champ est beaucoup plus élevée que l'extension spatiale de la particule, celle-ci ne ressent pas les variations spatiales du champ. Pour que tous les atomes d'un agrégat de rayon **R** subissent le même champ laser, il faut donc :

$$\lambda \gg R \qquad \text{(III. 2)}$$

La polarisation de l'agrégat influe aussi sur le champ interne. Puisque la deuxième hypothèse suppose que la répartition électronique est uniforme, alors si cette hypothèse est vérifiée en tout point de l'espace, la polarisation est identique et à l'intérieur de l'agrégat le champ interne peut être considéré comme uniforme.

2) La deuxième hypothèse considère que les électrons sont uniformément répartis à l'intérieur de l'agrégat, cette hypothèse est plus valable lorsque le rayon de l'agrégat est élevé. En effet, les résultats expérimentaux ont prouvés qu'à l'intérieur de l'agrégat les électrons restent plus confinés lorsque le rayon de l'agrégat est plus grand. Donc, la densité électronique interne devient plus importante, de nombreuses collisions de type électrons-ions et électrons-électrons sont induit par cette forte densité. En plus ces collisions brisent le mouvement oscillatoire des électrons dans le champ laser de ce faite, on peut considérer la répartition électronique comme étant uniforme à l'intérieur de l'agrégat [171].

3) La troisième hypothèse suppose que la distribution énergétique des électrons peut être représentée à tout instant par une fonction de distribution maxwellienne, cette hypothèse dépond aussi de l'importance des collisions, en effet pour une température $\boldsymbol{T_e}$, les distributions maxwellienne des électrons suppose la thermalisation des électrons, cette dernière n'est possible que si la fréquence de collisions à l'intérieur d'un plasma peut-être évaluée selon l'expression [203] :

$$\nu_{ee}[s^{-1}] = 2{,}91 \times 10^{-6} n_e T_e^{-3/2} ln\Lambda_e \qquad \text{(III. 3)}$$

Où :

n_e : Densité électronique (cm^{-3}).

T_e : Température électronique (eV).

$ln\Lambda_e$: Logarithme coulombien qui vaut $ln\Lambda_e = 24 - \ln\left(n_e^{1/2}/T_e\right)$ pour $T_e \gtrsim 10eV$ [201].

Pour un agrégat, si on prend comme valeur caractéristiques $n_e = 10^{23} cm^{-3}$ et $T_e = 500\ eV$ ce qui donne une fréquence de collisions électron-électron de l'ordre de $10^{14} s^{-1}$. Pour la température Te, il n'est pas sur que tout les électrons aient le temps de ce thermaliser puisque l'évolution de l'agrégat est très rapide cette troisième hypothèse du modèle peut ainsi sembler excessive.

III.4. Mécanisme nanoplasma

Dans cette partie, nous allons voir les différents mécanismes qui se produisent lors de l'interaction laser-agrégat, et plus précisément nous allons voir à quel point les propriétés de l'agrégat peuvent influer sur ces mécanismes. D'autre part nous étudierons les effets de l'ionisation du milieu par le champ laser ainsi que les collisions. Nous citerons les divers paramètres fondamentaux des plasmas, ainsi que les différents modes d'absorption de l'énergie laser et du chauffage d'un plasma en évoquant l'interaction d'un laser avec un solide. Puis, nous verrons l'impact des forces de pression qui sont la cause de l'expansion de l'agrégat. Puisque, le modèle nanoplasma est en parfaite accord avec les résultats expérimentaux, quelques définitions des mécanismes présentés ici sont basés sur les hypothèses de ce modèle.

III.4.1. Champ électrique interne

III.4.1.1. Le champ laser

Le faite de connaitre le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat, permet de calculer l'ionisation par effet de champ, ce même champ dépond du champ laser. Celui-ci peut s'écrire sous la forme : $\overrightarrow{E_{ext}}(\mathrm{t}) = \mathrm{E_0 f(t) sin(\omega t)}\overrightarrow{\mathrm{e_Z}}$, où $\mathrm{E_0}$ est l'amplitude maximale du champ, f(t) correspond à l'enveloppe du champ lentement variable, et $\mathrm{e_Z}$ est la direction de polarisation du champ [171].

D'un point de vue de l'approximation quasi-statique et en considèrent une enveloppe gaussienne, le champ peut prendre la forme suivante :

$$E_{ext}(t) = E_0 exp\left(-2ln2\frac{t^2}{\tau^2}\right) e_Z \qquad \text{(III. 4)}$$

Où τ est la durée de l'impulsion à mi-hauteur (FWHM). La relation qui lie l'intensité du laser au champ est :

$$I(t) = \frac{1}{2}\varepsilon_0 c E^2(t) \qquad \text{(III. 5)}$$

Donc, l'amplitude maximale du champ peut-être reliée à l'éclairement crête

$$E_0 = \sqrt{\frac{2I_0}{\varepsilon_0 c}} \qquad \text{(III. 6)}$$

Il est aussi important de souligner le faite que le champ magnétique de l'impulsion laser est négligeable si l'intensité laser est inférieur à 10^{20} W.cm^{-2}.

III.4.1.2. Le champ à l'intérieur de l'agrégat

Les particules composantes l'agrégat ressentent un champ interne qui résulte de la combinaison du champ dépolarisant avec le champ externe. Pour la détermination de ce champ, l'agrégat est considéré comme étant une sphère diélectrique placée dans un champ statique, monochromatique et uniforme [204].

$$E_{int}(t) = \frac{3}{|2+\varepsilon|} E_{ext}(t) \qquad \text{(III. 7)}$$

Où ε est la fonction diélectrique du milieu, le calcul de cette fonction diélectrique suivant le modèle de Drude pour un milieu métallique donne l'expression suivante :

$$\varepsilon = 1 - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega(\omega + i\nu_{ei})} \qquad \text{(III. 8)}$$

ν_{ei} : Terme d'amortissement qui correspond à la fréquence de collisions électrons-ions.

ω: Pulsation du laser.

ω_{pe} : La fréquence plasma électronique.

En ce qui concerne le choix de la réponse du nanoplasma au champ laser, différentes remarque peuvent être observées :

- Avant tout, on sait que le largueur spectral est intrinsèquement relié à la durée de l'impulsion laser. Ainsi, le champ externe appliqué à l'agrégat n'est pas totalement monochromatique ; c'est pour cela qu'il faut prendre en compte les différentes composantes spectrales de l'impulsion dans le but de calculer le champ interne :

$$\mathbf{E_{int}(t)} = \Re e\left\{\int_{\omega-\Delta\omega}^{\omega+\Delta\omega} d\omega' e^{i\omega' t}\mathbf{E_{ext}}(\omega')\varepsilon(\omega')\right\} \quad \text{(III. 9)}$$

Où $\varepsilon(\omega')$: la fonction diélectrique associée à la composante spectrale ω', et $\Delta\omega$ le largueur spectrale de l'impulsion. Il est aussi à noter que l'approximation monochromatique peut-être utilisée pour des impulsions courtes, de l'ordre de 50fs.

- Malgré que le champ électrique est calculé pour une sphère diélectrique, dans le cas d'un milieu métallique, il est aussi possible d'utiliser la fonction diélectrique de Drude (éq. (III.8)). En effet, puisque à l'intérieur de l'agrégat, on va trouver des électrons libres, une description métallique de la réponse de l'agrégat semble être plus appropriée.

III.4.1.3. Mise en évidence d'une résonance

L'équation (III.7) met en évidence la possibilité d'une résonance lorsque $\varepsilon = -2$, et selon l'équation (III.8), cette résonance apparait lorsque $\omega = \omega_{pe}/\sqrt{3}$ ce qui correspond à la fréquence de Mie : un déplacement du nuage d'électron libres par rapport aux ions est induit par le champ laser. L'existence d'une force de rappel électrostatique entre les électrons libre et les ions de l'agrégat induit une oscillation collective du nuage électronique en présence d'un milieu avec des dimensions finies. La pulsation propre associer à ce mouvement s'appelle pulsation de Mie (ou bien, plasma de Mie), $\omega_{Mie} = \omega_{pe}/\sqrt{3}$. Donc, à l'intérieur de l'agrégat l'excitation de cette pulsation par une impulsion laser quand $\omega = \omega_{Mie}$ engendre l'amplification du champ par rapport au champ externe, ce qui crée une forte absorption d'énergie dans le nanoplasma. La figure III.2 représente le rapport entre le champ interne et externe en fonction du rapport de la densité électronique à la densité critiquen_c. En effet la condition de résonance $\omega = \omega_{pe}/\sqrt{3}$ peut se transformer à une condition sur la densité électronique n_e.

$$\omega = \frac{\omega_{pe}}{\sqrt{3}} \Leftrightarrow n_e = 3n_c = 3\frac{\varepsilon_0 m_e \omega^2}{e^2} \quad \text{(III. 10)}$$

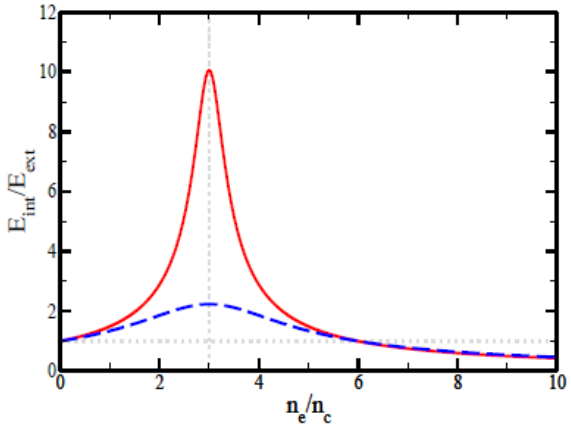


Figure III.2 *: Amplification ou réduction du champ interne par rapport au champ laser en fonction de la densité électronique normalisée à la densité critique pour une fréquence de collision électron-ion telle que* $\frac{\upsilon_{ei}}{\omega} = 0{,}1$ *(–) telle que* $\frac{\upsilon_{ei}}{\omega} = 0{,}5$ *(– –)[171].*

Ainsi et selon ce modèle, lorsque la densité électronique prend la valeur de $3n_c$, une absorption résonante apparait et le champ interne est alors fortement amplifié, de plus on voit clairement sur la (fig.III.2) qui à l'intérieur de l'agrégat, il est amplifié quand la densité critique est 6 fois plus que la densité électronique, et il est réduis pour une densité électronique supérieur. En effet, le champ externe est donc écranté et l'onde électromagnétique ne peut plus se propager dans le milieu.

D'autre part, l'amplitude de la résonance varie selon la fréquence de collision. La valeur du champ interne à la résonance est :

$$\mathbf{E_{int}}(n_e = 3n_c) = \sqrt{1 + \left(\frac{\omega}{\nu_{ei}}\right)^2}\ \mathbf{E_{ext}} \qquad (III.11)$$

Dans ces conditions, la fréquence de collision électron-ion est considérée comme étant un terme d'amortissement. Lorsque la fréquence de collision diminue l'amplitude du champ électrique augmente [171].

III.4.2. Fréquence de collisions électrons-ions

III.4.2.1. De la nécessité d'un calcule adapté à l'interaction laser agrégat

L'équipe de T.Ditmire utilise, dans le cas des champs de faible intensité les expressions de S. Braginski [205] et celles de V. Silin [206] dans le cas des champs forts. La valeur de la fréquence de collision électron-ion dans le cas intermédiaire a été déterminée numériquement par T. Ditmire et ses coll. Et ils ont introduit une fréquence maximale pour limiter les valeurs

obtenues. Les deux expressions de S. Braginiskù et V.Silin sont dépendante du logarithme coulombien lnΛ [207]. Ce logarithme s'écrit sous la forme suivante :

$$ln\Lambda = ln\frac{b_{max}}{b_{min}} \qquad (III.12)$$

Où, b : le paramètre d'impact classique. b_{max} : La distance maximale d'approche pour laquelle l'électron incident interagit avec l'ion cible. b_{max} : choisit tel que $b_{max} = \lambda_D$ où $\lambda_D^2 = \varepsilon_0 K_B T_e/(e^2 n_e)$ est la longueur d'onde de Debye. Cette longueur est définit tell que, au-delà de λ_D, la densité électronique environnante écarte l'ion, alors l'électron incident va juste ressentir l'influence de l'ion cible.

b_{min} : La distance minimale d'approche possible pour l'électron incident. Elle est déterminée classiquement telle que $b_{min} = b_\perp = Ze^2/(4\pi\varepsilon_0 K_B T_e)$ où $b_\perp$ est le paramètre d'impact correspondant à une déflection de 90° en imposant une distance minimale d'approche d'une valeur égale à la longueur d'onde de De Broglie, $\lambda_B = \hbar/\sqrt{m_e K_B T_c}$; des considérations quantiques peuvent être ajoutées. Donc, b_{min} est définit telle que $b_{min} = max(b_\perp; \lambda_B)$. Finalement le logarithme coulombien prend la forme :

$$ln\Lambda = min\left[ln\left(\alpha\frac{T_e^{3/2}}{n_e^{1/2}}\right); ln\left(\beta\frac{T_e}{n_e^{1/2}}\right)\right] \qquad (III.13)$$

$\alpha\ et\ \beta$ Des coefficients.

L'inconvénient ici, c'est qu'il est impossible d'utiliser cette expression pour la détermination de l'évolution de la fréquence de collision électron-ion au cours de l'interaction laser-agrégat. En effet, au cour du temps, les conditions de densité et de température électronique à l'intérieur de l'agrégat varient beaucoup. Au commencement de l'interaction le nombre d'électrons libres se trouvant à l'intérieur de l'agrégat augmente rapidement, a cause des collisions électrons-ions et l'ionisation sous l'effet du champ. Par contre, puisque le chauffage du gaz d'électron n'est pas encore efficace, la température électronique reste alors faible. Dans la physique des plasmas, à partir du paramètre noté Γ_c, il est possible de déterminer si un plasma est faiblement couplé ou pas autrement dit, ce paramètre permet d'étudier, la pertinence d'un traitement binaire des collisions :

$$\Gamma_c = \frac{e^3\sqrt{n_e}}{(\varepsilon_0 K_B T_e)^{3/2}} \qquad (III.14)$$

Ainsi, au début de l'interaction la valeur de Γ_c est supérieur à 1 si la densité est élevée et la température est faible, ce qui signifie un plasma couplé. Dans ces conditions, le calcule du logarithme colombien n'est pas valide ; ce dernier devient négatif (alors que d'après la définition (III.12) on a nécessairement $b_{max} > b_{min}$ soit $ln > 0$).

III.4.2.2. Fréquence de collision pour l'interaction laser-agrégat

La fréquence de collision électron-ion est intrinsèquement liée au taux de chauffage par Bremsstrahlung inverse. Selon P.Musler et coll. [208], la variation de quantité de mouvement par unité de temps d'un électron lors d'une collision s'écrit :

$$p(t) = \upsilon_{ei}(t)\, p(t) \tag{III.15}$$

L'énergie absorbée par un électron, moyennée sur un cycle optique, dans le cas d'une distribution maxwellienne isotrope est :

$$\frac{\partial E}{\partial t} = m_e \overline{\upsilon_{ei}\, V_{osc}^2\,(t)} = m_e \overline{\upsilon_{ei}}\ \ \overline{V_{osc}^2\,(t)} \tag{III.16}$$

Où la fréquence de collision électron-ion moyennée sur un cycle optique peut etre définit à partir de l'approximation effectuée sur les valeurs moyennes.

Dans le champ laser, la vitesse d'oscillatison d'un électron est :

$$v_{osc}(t) = \frac{eE_{int}}{m_e\,\omega} \cos\omega t \tag{III.17}$$

Sachant que la relation qui relie l'énergie absorbée par un électron à la température est: $E = \frac{3}{2} K_B T$, et en moyennant la vitesse d'oscillation sur un cycle optique, il est possible d'obtenir la relation entre le taux de chauffage et la fréquence de collision électron-ion :

$$\frac{\partial K_B T_e}{\partial t} = \frac{4}{3}\, \upsilon_{ei}\ U_p \tag{III.18}$$

Où : U_p : l'énergie moyenne acquise par un électron sur un cycle optique ($U_p = \frac{e^2 E_{int}^2}{4 m_e \omega^2}$)

Donc, à partie du taux de chauffage obtenu par N. David et coll [209]. (Valide pour n'importe quelle intensité) on peut déduire l'expression de la fréquence de collision suivante :

$$\upsilon_{ei}^{David} = \frac{8e^4 Z^2}{m_e^2\,(4\pi\varepsilon_0)^2}\ \frac{\alpha(n_i)}{(v_{th}^2 + v_{osc}^2)^{3/2}}\ \ln\Lambda_1 \tag{III.19}$$

Où : $v_{th}^2 = \frac{K_B T_e}{m_e}$

Cette expression est valide lorsque ħω<<$K_B T_e$. Par contre pour ħω>$K_B T_e$, il est recomendé d'utiliser l'expression (III.20) obtenu par A.Plishchuk et coll. Qui concerne le taux de chauffage.

$$\frac{\partial K_B T_e^{Polis\,h}}{\partial t} = \frac{8e^4 Z^2}{3m_e(4\pi\varepsilon_0)^2 V_{osc}} n_i ln\Lambda_2 \qquad \text{(III. 20)}$$

Où

$$ln\Lambda_2 = \frac{1}{4}\left[ln\frac{m_e V_{osc}^2}{\hbar\omega}\right]^2 \qquad \text{(III. 21)}$$

L'utilisation de la relation (III.18) donne l'expression final de la fréquence de collision électron-ion pour la valeur de ħω>$K_B T_e$

$$\upsilon_{ei}^{David} = \frac{8\,e^4 Z^2}{m_e^2(4\pi\varepsilon_0)^2}\frac{n_i}{V_{osc}^3}\ln\Lambda_2 \qquad \text{(III.22)}$$

Pour prendre en compte la dimension finie de l'agrégat, il faut corriger les expressions (III.19) et (III.22). En suivant F.Megi et coll [210], S.Michou et coll. Ont introduit un terme supplémentaire pour le calcule de la fréquence de collision électron-ion :

$$\upsilon_s = \frac{V}{R} \qquad \text{(III.23)}$$

Où : v =$\sqrt{v_{th}^2 + v_{osc}^2}$

R : rayon de l'agrégat.

Lorsque n_e=3n_c, ce terme, appelé fréquence de collision électron-surface, permet de limiter les effets de la résonnance. Donc, lors de cette résonnance, le champ interne ainsi que le taux de chauffage peuvent être amplifié d'une manière très significative. Comme une première approximation, la fréquence de collision électron-ion (eq. (III.19)) est inversement proportionnel au cube de la vitesse électronique. Un important accroissement de la vitesse électronique est induit par le champ et la température élevée au moment de la résonnance ce qui cause la réduction de la fréquence de collision. La fréquence est d'une grande importance puisqu'elle agit comme un terme d'amortissement.

Il est possible de traduire la réflexion des électrons sur la surface de l'agrégat grâce au terme introduit par F.Megi et coll. Ce processus, qui est en grande analogie avec le phénomène de physique nucléaire de dissipation sur une paroi mobile [211], a été mis en évidence pour des agrégats métalliques dans le régime de Mie [212]. Ce qui correspond à la perte de cohérence du plasmon de Mie (atténuation de Landau).

III.4.3. Ionisation collisionelle

Une fois que les premiers électrons soient ionisés par effet tunnel, ils peuvent entrer en collisions avec les atomes ou ions environnants et s'ils ont une énergie suffisante, ils peuvent à leur tour ioniser d'autres électrons. Pour le modèle original du nanoplasma, T. Ditmire et coll devisent le taux d'ionisation collisionel notée W_{coll} en deux parties : $W_{coll} = W_{th} + W_{las}$ [117]. Ces deux termes résultent de la décomposition de la vitesse électronique en deux termes $v_e = v_{osc}+v_{th}$, où v_{th} est la vitesse thermique des électrons due à la température interne du gaz d'électrons et $v_{osc}(t)$ est la vitesse acquise par oscillations dans le champ (équation III.17).

$$v_{osc}(t) = \frac{eE_{int}}{m_e \omega}|cos(wt)| \qquad \text{(III. 24)}$$

T. Ditmire et coll supposent qu'il est possible d'écrire la probabilité d'ionisation d'un atome par collision avec un électron de vitesse v_e sous la forme d'une somme de deux taux chacun de ces taux étant associé à une des composante de la vitesse. Donc, le taux d'ionisation « thermique » W_{th} correspond à la probabilité d'ionisation par la composante thermique de la vitesse v_{th} et le taux d'ionisation « Suprathermique » W_{las} dérive de la composante de la vitesse acquise par oscillation $v_{osc}(t)$. Le terme « suprathermique » résulte du faite que la vitesse d'oscillation des électrons dans le champ peut-être beaucoup plus importante que la température électronique moyenne. Il est possible de calculer en utilisant une section efficace de collision électron-ion σ_j, et elle résulte d'une moyenne sur la distribution de vitesses pour le taux thermique, et sur une période optique pour le taux suprathermique :

$$W_{th}[s^{-1}] = n_e \langle \sigma_j v_{th} \rangle_{\text{distribution de vitesses}} \qquad \text{(III. 25)}$$

$$W_{las}[s^{-1}] = n_e \langle \sigma_j v_{osc} \rangle_{\text{péroide optique}} \qquad \text{(III. 26)}$$

Pour un niveau électronique j, Lotz. W a obtenu l'expression de la section efficaces d'ionisation par collisions électron-ion [213].

$$\sigma_j = a_j q_j \frac{ln\left(E_{inc}/I_{P_j}\right)}{E_{inc} I_{P_j}} \quad \text{(III. 27)}$$

a_j : un coefficient égale à 1,15.10^{-55} J^2m^2.

q_j : le nombre d'électrons sur la couche ionisée.

I_{P_j} : le poteniel d'ionisation de l'électron initialement lié.

E_{inc} : L'énergie cinétique de l'électron incident.

III.4.3.1. Amélioration du calcul du taux d'ionisation

Samuel Micheau et coll [171] ont élaboré une autre méthode pour calculer le taux d'ionisation par collision électron-ion. En effet, la décomposition $v_e = v_{th} + v_{osc}$ ne veut pas forcément dire la séparabilité du taux collisionnel $W_{coll} = W_{th} + W_{las}$ ceci est plus claire si l'on considére une distribution électronique monocénitique dans un champ laser statique d'une telle façon que $v_{osc} = v_{th}$. Selon les calcules effectués par T. Ditmire et coll. Le taux est égale à $W_{th} + W_{lsc} = 2n_e\sigma_j(v_{th})\ v_{th}$, alors que si on considére la vitesse électronique totale $v_e = v_{th} + v_{osc}$, on obtient un taux unique égale à $W_{tot} = 2n_e\sigma_j(2v_{th})v_{th} \neq W_{th} + W_{las}$ par conséqunt l'équipe de S. Micheau et coll. ont développé une procédure qui évite la décompostion $W_{th} + W_{las}$. A partir de l'hypothése 3, on peut écrire la distribution de vitesse électronique sous la forme d'une fonction de distribution maxwellienne $f(v)$:

$$f(v_e) = \left(\frac{m_e}{2\pi K_B T_e}\right)^{3/2} exp\left(-\frac{m_e v_e^2}{2K_B T_e}\right) \quad \text{(III. 28)}$$

Soit pour chacune des composantes x, y, z de la vitesse :

$$f(v_{e_i}) = \left(\frac{m_e}{2\pi K_B T_e}\right)^{1/2} exp\left(-\frac{m_e v_{ei}^2}{2K_B T_e}\right) \quad \text{(III. 29)}$$

Où, i : x, y, z.

Les composantes v_{e_i}, de la vitesse sont aléatoirement obtenues pour une température électronique T_e et cela à l'aide d'une distribution normale en utilisant la méthode direct [214].

$$v_{e_{i_n}} = v_{th}(-2lnU_n)^{1/2}cos(2\pi U_{n+1}) \quad \text{(III. 30)}$$

$$v_{e_{i_{n+1}}} = v_{th}(-2lnU_n)^{\frac{1}{2}}sin(2\pi U_{n+1}) \quad \text{(III. 31)}$$

Pour cette expression, v_{th} la vitesse thermique électronique et le nombre U_n sont générés aléatoirement en utilisant la distribution uniforme dans l'intervalle [0; 1].

Dans le champ électronique $E_{int}(t)$ (eq. (III.24)), la vitesse d'oscillation électronique $v_{osc}(t)$ vient s'ajouter à la distribution maxwellienne. La direction de l'oscillation des électrons dépond de l'exe de la polarisation du champ électrique.

III.4.3.2. Taux d'ionisation collisionnel : forme analytique

Pour que le calcul du taux d'ionisation collisionell soit plus rapide une forme analytique a été déterminé. Cette derniére permet de reproduire les résultats obtenus avec la méthode numérique :

$$W_{coll}[s^{-1}] = W_{th} + n_e \frac{a_j q_j}{I_P^{3/2} m_e^{1/2}} \left[f(\mu) exp\left(-0{,}7 \frac{K_B T_e}{I_p}\right) - g(\mu) exp\left(-3{,}5 \frac{K_B T_e}{I_P}\right) \right] \quad \text{(III. 32)}$$

Où
$$\mu = \frac{U_p}{I_p} \quad \text{(III. 33)}$$

$$f(\mu) = \frac{1{,}5\mu}{2+\mu} \quad \text{(III. 34)}$$

Et
$$g(\mu) = \begin{cases} f(\mu)\ si\ \mu \leq 0{,}5 \\ 0{,}3 \text{ sinon.} \end{cases} \quad \text{(III. 35)}$$

Où Up est l'énergie ponderomotrice

L'énergie cinétique moyenne d'un électron oscillant dans le champ électrique Up $= \frac{e^2 E_{int}^2}{4\omega^2 m_e}$

Pour une distribution uniquement maxwellienne (c'est-à-dire que $v_{osc} = 0$), la valeur du taux W_{th} est celle de l'ionisation collisionnelle calculée selon la méthode utilisée par S.Michou. ce taux correspond donc au taux d'ionisation thermique calculé par T.Ditmire et coll.

$$W_{th}[s^{-1}] = n_e \frac{2\sqrt{2}}{(\pi m_e k_B T_e)^{1/2}} \frac{a_j q_j}{I_P} E_i\left(\frac{I_P}{k_B T_e}\right) \quad \text{(III. 36)}$$

Où : $E_i(\alpha) = \int_x^\infty \frac{e^{-t}}{t} dt$ est l'intégrale exponentielle d'ordre 1

III.4.4. Émission électronique

Les électrons libres peuvent quitter l'agrégat si leur énergie est assez suffisante. Dans le but de quantifier le nombre d'électrons quittant l'agrégat. T. Ditmire et coll. ont pris en compte le libre parcours moyen d'un électron au cœur d'un plasma ainsi que la géométrie de l'agrégat.

Pour que l'électron puisse quitter l'agrégat, il doit posséder : Un libre parcours moyen λ_e supérieur à la distance qui le sépare de la surface de l'agrégat, aussi une énergie cinétique élevée dans le but de compenser la barrière de potentiel coulombienne associés au rappel électrostatique des ions de l'agrégat. En considérant la distribution énergétique des électrons maxwellienne, le taux d'électrons émis par seconde W^{FS} (FS : Free Streaming) est alors (cf. [215] pour un calcule détaillé) :

$$W^{FS}[S^{-1}] = n_e \frac{2\sqrt{2\pi}}{\sqrt{m_e K_B T_e}}(E_{esc} + K_B T_e) exp\left(-\frac{E_{esc}}{K_B T_e}\right) \times \begin{cases} \frac{\lambda_e}{4R}(12R^2 - \lambda_e^2) & pour\ \lambda_e < R \\ 4R^2 & pour\ \lambda_e \geq R \end{cases} \quad \text{(III. 37)}$$

Où, R est le rayon de l'agrégat.

On détermine le libre parcours moyen selon : v

$$\lambda_e = \frac{\langle \mathrm{v} \rangle}{\nu_{ei}} \quad \text{(III. 38)}$$

Avec ν_{ei} : La fréquence de collisions électron-ion.

$\langle v \rangle$: Vitesse moyenne de l'électron.

Dans le cas d'une distribution maxwellienne :

$$\lambda_e = \sqrt{\frac{8K_B T_e}{\pi m_e}} \frac{1}{\nu_{ei}} \quad \text{(III. 39)}$$

L'agrégat est considéré comme etant un conducteur parfait chargé Q fois dans le but de déterminer l'enrgie cinétique E_{esc} necessaire pour qu'un électron puisse s'échapper. L'énergie potentielle coulombienne d'un tell conducteur est définit par :$Qe^2/(8\pi\varepsilon_0 R)$. Par conséquant, quand un électron quitte l'agrégat, il ressent Q+1 charges, la valeur de l'energie cinétique minimale que l'électron doit aquérir pour qu'il quite l'agrégat est :

$$E_{esc} = \frac{(Q+1)e^2}{8\pi\varepsilon_0 R} \quad \text{(III. 40)}$$

III.4.5. Expansion de l'agrégat

Un défaut de charges négative dans l'agrégat est crée à cause de l'émission d'électron. Cette perte de neutralité du plasma conduit à l'augmentation du rayon de l'agrégat dùe à la répulsion électrostatique entre les ions. Si on considére l'agrégat comme une sphére conductrice parfaite de charge Q, l'influence de ce défaut de charge sur l'expansion du nanoplasma peut se métre sous la forme d'une pression coulombienne. Cette meme pression représente le rapport de l'energie électrostatique accumulée dans l'agrégat sur le volume de celui-ci. Et donc on aura une expréssion comme suite :

$$P_C = \frac{3Q^2e^2}{32\pi^2\varepsilon_0 R^4} \qquad \text{(III. 41)}$$

Une autre pression qui vient de l'énergie absorbée par l'agrégat s'ajoute à la pression coulombienne. En effet, quand cette énergie est plus importante la forte température électronique cause l'instabilité du plasma, un accroissement du rayon de l'agrégat est entrainé par la pression cinétique (aussi désignée par pression hydrodynamique) et elle est de la forme

$$P_H = n_e K_B T_e \qquad \text{(III. 42)}$$

D'une autre part, cette pression devrait également prendre en compte l'énergie ionique selon $P_H = n_e K_B T_e + n_i K_B T_i$. en effet, lorsque les électrons libres entrent en collision avec les ions environnants, une partie de l'énergie absorbé par les électrons libres est transférée aux ions sous forme d'énergie cinétique. Cependant, puisque les ions sont beaucoup plus lourd à comparer aux électrons, la température ionique est plus faible que la température électronique on peut donc négliger le second terme de la pression cinétique.

L'équipe de T. Ditmire et coll utilise un modèle d'expansion auto-semblable d'un plasma à symétrie sphérique pour la détermination temporelle du rayon [216]. Ce modèle incite à conserver les différentes grandeurs caractéristiques des plasmas tels que la densité ou la pression au cour du temps. L'application de la deuxième loi de Newton à un fluide qui se délatte au cour du temps, permet d'obtenir l'expression de la variation du rayon de l'agrégat :

$$\frac{d^2R}{dt^2} = 5\frac{P_H + P_C}{n_i m_i}\frac{1}{R} \qquad \text{(III. 43)}$$

Où, m_i : La masse ionique (choisie comme étant égale à la masse de l'atome neutre).

III.4.6. Température électronique

L'équation de conservation de l'énergie thermique électronique totale au sein de l'agrégat détermine la température du gaz d'électrons :

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{dt}}\left(\frac{3}{2}\mathrm{N_e K_B T_e}\right) = \frac{\mathrm{d}}{\mathrm{dt}}\,[\text{Terme de gain d}'\text{énergie} - \text{Termes de perte d}'\text{énergie}]. \qquad (\mathrm{III.44})$$

Où, $\mathbf{N_e}$ est le nombre d'électrons libres.

On peut aussi en tirer l'équation d'évolution de la température électronique :

$$\frac{\partial \mathrm{K_B T_e}}{\partial \mathrm{t}} = -\frac{\mathrm{K_B T_e}}{\mathrm{N_e}}\frac{\partial \mathrm{N_e}}{\partial \mathrm{t}} + \frac{2}{3\mathrm{N_e}}[\text{termes de gain d}'\text{énergie} - \text{Termes de perte d}'\text{énergie}]. \qquad (\mathrm{III.45})$$

III.4.6.1. Terme de gain d'énergie

Chauffage par Bremsstrahlung inverse

Lorsqu'un milieu est soumis à champ électrique **E**, l'énergie absorbée par unité de temps et de volume [204] (le champ magnétique est négligé) est :

$$\mathrm{E_{abs}} = \mathrm{P}\frac{\mathrm{dE(t)}}{\mathrm{dt}} \qquad (\mathrm{III.46})$$

Puisque l'agrégat est considéré comme étant une sphère diélectrique et uniforme soumis au champ interne $\mathbf{E_{int}(t)}$, la polarisation **P(t)** est lié au champ par :

$$\mathrm{p(t)} = \varepsilon_0(\varepsilon - 1)\mathrm{E_{int}(t)} \qquad (\mathrm{III.47})$$

Où, ε est la fonction diélectrique de l'agrégat donnée par l'équation (III.8).

Il est possible d'écrire le champ $\mathbf{E_{int}(t)}$ et la polarisation **P(t)** sous une forme complexe, soit$E_{int}(t) = E_{int}(t)e^{i\omega t}e_z \;\; et \;\; P(t) = P(t)e^{i\omega t}e_z$, où $E_{int}(t)\; et\; P(t)$, qui correspondent aux enveloppes lentement variables ($t \ll \omega^{-1}$) du champ et de la polarisation. Si la variation temporelle de l'enveloppe du champ est négligée devant le terme oscillant ($dE_{int}(t)/dt \approx 0$) et en moyennant sur un cycle optique, l'énergie absorbée se réduit à :

$$E_{abs} = \frac{1}{2}\Re e\left\{P(t)\frac{dE^*_{int}(t)}{dt}\right\} = \frac{1}{2}\Re e\{-i\omega P(t)E_{int}(t)\} \qquad (\mathrm{III.48})$$

L'énergie absorbée par unité de temps dans le volume de l'agrégat V est alors :

$$\frac{\partial E^{BI}}{\partial t} = \frac{V\omega\varepsilon_0}{2}\Re e\{-i(\varepsilon - 1)|E^2_{int}(t)|\} = \frac{V\omega\varepsilon_0}{2}\Im m(\varepsilon)|E^2_{int}(t)| \qquad (\mathrm{III.49})$$

En s'entraidant de l'expression (III.7) du champ interne, on peut déterminer le taux de chauffage de l'agrégat par bremsstrahlung inverse :

$$\frac{\partial E^{BI}}{\partial t} = \frac{9\varepsilon_0 |E_{ext}(t)|^2}{2} \frac{\omega^2 \omega_{pe}^2 \nu_{ei}}{9\omega^2(\omega^2 + \nu_{ei}^2) + \omega_{pe}^2(\omega_{pe}^2 - 6\omega^2)} \frac{4}{3}\pi R^3 \qquad \text{(III. 50)}$$

Thermalisation des électrons nouvellement émis

À la température du gaz d'électrons environnant, le modèle considère que les électrons nouvellement libérés sois par effet de champ ou bien par collisions se thermalisent instantanément.

$$\frac{\partial E^{th}}{\partial t} = \frac{3}{2}\sum_q \left(W_{opt}^q + W_{coll}^q\right) N_q K_B T_e \qquad \text{(III. 51)}$$

Où W_{opt}^q : Le taux d'ionisation par effet de champ.

W_{coll}^q : Le taux d'ionisation collisionnel.

N_q : Population associée à cet état de charge q.

Les deux valeurs de W_{opt} et W_{coll} concernent les atomes ou ions de charge q.

Accélération des électrons par le champ électrique

En oscillant dans le champ électrique interne de l'agrégat, les électrons nouvellement émis acquièrent de l'énergie. L'énergie acquise par un électron, moyennée sur un cycle optique est l'énergie pondéromotrice est donné par l'équation (:

$$U_P = \frac{e^2 E_{int}^2}{4 m_e \omega^2} \qquad \text{(III. 52)}$$

Donc, l'expression du taux de chauffage des électrons nouvellement libérés accélérés dans le champ électrique est :

$$\frac{\partial E^{acc}}{\partial t} = \sum_q \left(W_{opt}^q + W_{coll}^q\right) N_q U_P \qquad \text{(III. 53)}$$

III.4.6.2. Termes de perte d'énergie

Perte d'énergie due à l'ionisation collisionelle

L'électron incident perd de l'énergie à cause de l'ionisation colisionnelle. On considère que l'ionisation s'effectue au seuil autrement dit, l'électron éjecté possède une énergie nulle lors des collisions responsable de l'ionisation, l'énergie perdue par unité de temps est :

$$\frac{\partial E^{coll}}{\partial t} = \sum_{q} I_{P_q} W_{coll}^{q} N_q \qquad \text{(III. 54)}$$

Où I_{P_q} : Le potentiel d'ionisation de charge **q.**

Energie emportée par les électrons quittant l'agrégat

Une partie de l'énergie thermique interne est emportée par les électrons, une fois qu'ils acquièrent assez d'énergie pour quitter l'agrégat. Le principe de calcule de cette énergie est le même que le taux d'émission électronique [215].

$$\frac{\partial E^{FS}}{\partial t} = n_e 2\sqrt{2\pi}\sqrt{\frac{K_B T_e}{m_e}}\left(\frac{E_{esc}^2}{K_B T_e} + 2E_{esc} + 2K_B T_e\right) exp\left(-\frac{E_{esc}}{K_B T_e}\right) \times$$

$$\begin{cases} \frac{\lambda_e}{4R}(12R^2 - \lambda_e^2) & pour\ \lambda_e < R \\ 4R^2 & pour\ \lambda_e \geq R \end{cases} \qquad \text{(III. 55)}$$

III.4.6.3. Termes supplémentaire

Il est important d'ajouter certain termes dans l'équation d'évolution de la température électronique dans le bute de prendre en compte tous les processus influant sur la température.

Variation de nombre d'électrons

La dérivée totale de l'énergie thermique totale $E^{th} = \frac{3}{2} N_e K_B T_e$ qui se conserve au cours du temps, donne le premier terme de l'équation (III.45). Ainsi, lorsque le nombre d'électrons N_e croit, la température diminue et réciproquement.

$$\frac{\partial K_B T_e^{var.N_e}}{\partial t} = -\frac{K_B T_e}{N_e}\frac{\partial N_e}{\partial t} \qquad \text{(III. 56)}$$

Le terme exprime la répercussion de la variation du nombre d'électron libres sur la température électronique au sein de l'agrégat.

Expansion de l'agrégat

T. Ditmire et coll considèrent le gaz d'électrons comme un gaz parfait pour pouvoir déterminer l'influence de l'expansion de l'agrégat sur la perte d'énergie thermique :

$$\frac{3}{2}N_e\frac{\partial K_B T_e}{\partial t} = P\frac{\partial V}{\partial t} \qquad \text{(III. 57)}$$

Où, V : Le volume de l'agrégat.

P : La pression hydrodynamique P_H assosié au gaz d'électron .

En fin on aura l'expression suivante :

$$\frac{\partial K_B T_e^{exp}}{\partial t} = \frac{2K_B T_e}{R}\frac{\partial R}{\partial t} \qquad \text{(III. 58)}$$

Thermalisation électron/ion

Une partie de l'énergie thermique des électron chaud est transférée aux ions lorsque ils entre en collision avec ces derniers :

$$\frac{\partial k_B T_e^{therm}}{\partial t} = \frac{K_B T_e - K_B T_i}{\tau_{eq}} \qquad \text{(III. 59)}$$

Où, τ_{eq} : Le temps de thermalisation qui vaut $m_i/m_e\nu_{ei}$.

ν_{ei} : La fréquence de collisions déterminées précédemment.

Il est à noter qu'il faut m_i/m_e collisions pour que toute l'énergie des électrons soit transférer aux ions ; de plus, puisque la température électronique est beaucoup plus élevée, on considère que $\mathrm{K_B T_e} - \mathrm{K_B T_i} \simeq \mathrm{K_B T_e}$

III.4.7. Implémentation numérique

Dans le modèle nanoplasma, qu'on vient de voir tous les processus pris en compte dans le modèle nanoplasma donnent un système d'équations couplées :

$$
\begin{cases}
\dfrac{\partial R}{\partial t} = V_{exp} \\
\dfrac{\partial V_{exp}}{\partial t} = 5\,\dfrac{P_{H+}P_C}{n_i m_i}\,\dfrac{1}{R} \\
\dfrac{\partial \mathrm{Q}}{\partial \mathrm{t}} = \mathrm{n_e}\dfrac{2\sqrt{2\pi}}{\sqrt{\mathrm{m_e k_B T_e}}}\,(\mathrm{E_{esc}} + \mathrm{K_B T_e})\exp\left(-\dfrac{\mathrm{E_{esc}}}{\mathrm{K_B T_e}}\right) \times \begin{cases} \dfrac{\lambda_\mathrm{e}}{4\mathrm{R}}(12\mathrm{R}^2 - \lambda_\mathrm{e}^2) & \text{pour } \lambda_\mathrm{e} < R \\ 4\mathrm{R}^2 & \text{pour } \lambda_\mathrm{e} \geq \mathrm{R} \end{cases} \\
\dfrac{\partial N_q}{\partial t} = \left(W_{opt}^{q-1} + W_{coll}^{q-1}\right)N_{q-1} - \left(W_{opt}^{q} + W_{coll}^{q}\right)N_q \\
\dfrac{\partial N_e}{\partial t} = \sum_q q\,\dfrac{\partial N_q}{\partial t} - \dfrac{\partial Q}{\partial t} \\
\dfrac{\partial k_B T_e}{\partial t} = \dfrac{2}{3N_e}\left[\dfrac{\partial E^{BI}}{\partial t} + \dfrac{\partial E^{th}}{\partial t} + \dfrac{\partial E^{acc}}{\partial t}\right] \\
\qquad\qquad - \left[\dfrac{\partial k_B T_e^{var.N_e}}{\partial t} + \dfrac{\partial k_B T_e^{exp}}{\partial t} + \dfrac{\partial k_B T_e^{therm}}{\partial t} + \dfrac{2}{3N_e}\dfrac{\partial E^{coll}}{\partial t} + \dfrac{2}{3N_e}\dfrac{\partial E^{FS}}{\partial t}\right]
\end{cases}
\tag{III.60}
$$

Où V_{exp} : La vitesse d'expansion de l'agrégat.

R : Le rayon de l'agrégat.

Q : La charge totale de l'agrégat, son évolution est donc égale au taux d'émission électronique

N_q : La population de chaque état de charge q, en pratique, il y a donc q équations $\frac{\partial N_q}{\partial t}$

N_e : Le nombre d'électrons libres dans l'agrégat

$K_B T_e$: La température électronique

Pour réduire l'équation d'évolution du rayon de l'agrégat (III.43) à un ensemble d'équation d'ordre 1, la vitesse d'expansion de l'agrégat V_{exp} a été introduite. En effet, ce système d'équations couplées est résolu à l'aide de la méthode Cash-Karp Runge-Kutta pour des équations différentielles d'ordre 1[217]. De plus, la méthode utilise un pas de temps variable, ce qui implique que les importantes variations des variables lors des résonances est correctement traités.

Il faut définir les conditions initiales pour utiliser la méthode de résolution du système. Pour pouvoir ioniser les atomes de l'agrégat, les simulations présentées par la suite débutent lorsque le champ laser est trop faible. Ce qui implique que le nombre d'électrons libres N_e est nul, ainsi que, la température T_e, la vitesse d'expansion v_{exp}, la charge totale de l'agrégat Q, et les populations de tous les ions N_q ($q \neq 0$). La population d'atomes neutres N_0 est égale au nombre N d'atomes dans l'agrégat et le rayon R de l'agrégat est égal au rayon initial R_0.

III.4.8. Méthodologie de travail

Pour l'obtention de nos résultats, on s'est basé sur l'utilisation du modèle nanoplasma modifié et adapté a nos différentes études, les différentes étapes de simulation qu'on a suivi sont résumées sur l'organigramme présenté ci-dessous (figure III.3).

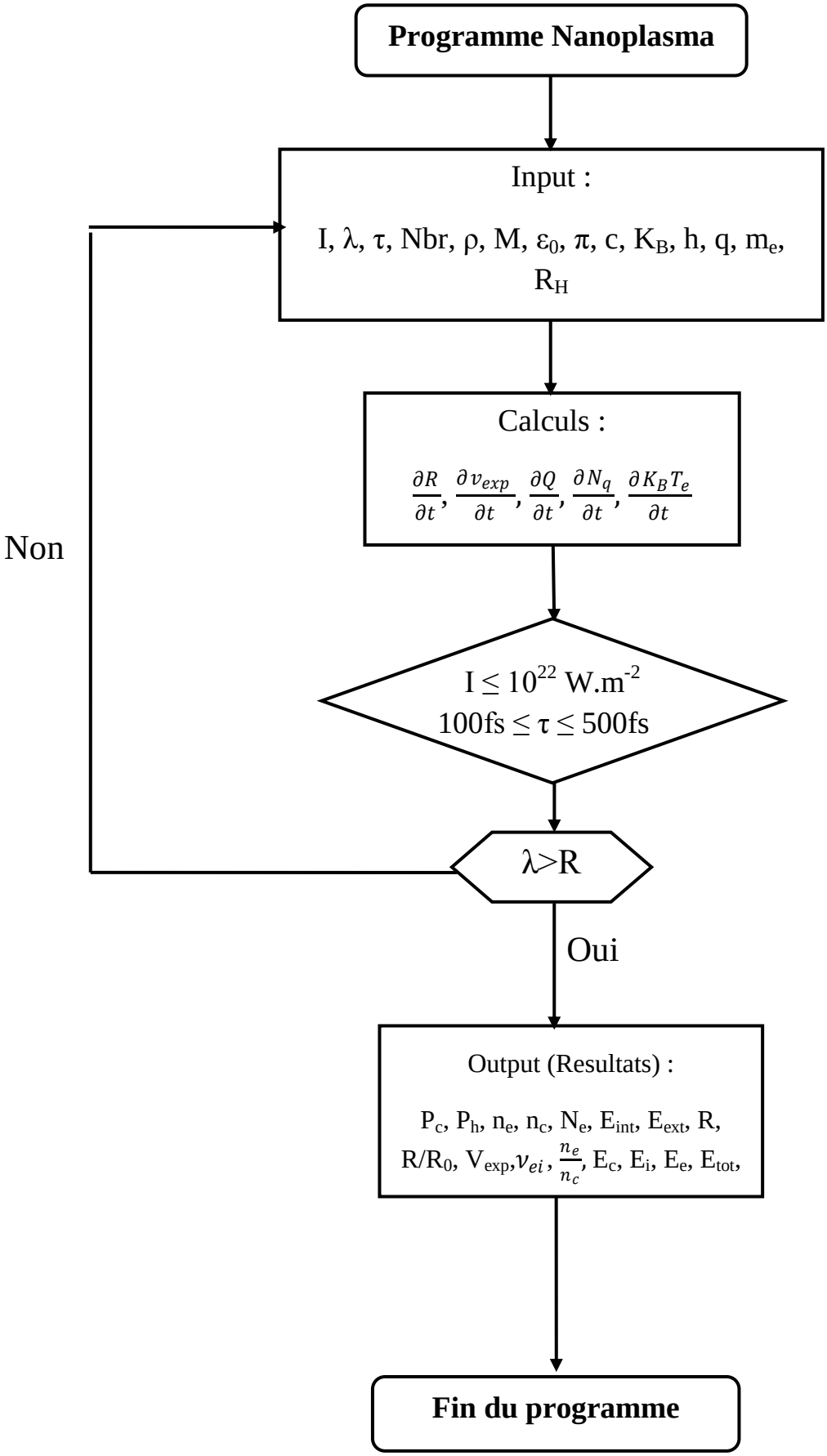


Figure III.3 : *Organigramme des étapes de simulation.*

III.5. Conclusion

Dans ce chapitre, pour décrire l'interaction entre un agrégat métallique et un champ laser femtoseconde intense, nous avons utilisé le modèle nanoplasma. L'avantage de ce modèle est qu'il prend en compte de nombreux processus tels que l'absorption de l'énergie par bremsstrahlung inverse, la dynamique d'ionisation de l'agrégat, l'émission d'électrons et l'expansion finale du nanoplasma. Cependant, ce modèle en son état ne nous permet pas d'obtenir les résultats qu'on veut. C'est pour ça qu'on a fait quelques modifications sur modèle original. On a aussi démontré les différents paramètres et condition utilisé dans nos calculs.

Chapitre 4

Présentation des résultats et discussions

IV.1. Introduction

Dans ce chapitre on va présenter les différents résultats obtenus par le modèle nanoplasma élaboré par T. Ditmire [117] en suite amélioré par F. Migi et al [210] et après utilisé par S. Micheau [171] par la suite modifié et adapté à notre étude dont le principe à été présenté dans le chapitre précédant. Dans un premier lieu on va revoir le modèle dynamique de l'ionisation en suite on interprétera les résultats obtenus d'une façon à montrer l'effet de la variation de l'intensité laser, la longueur d'onde ainsi que la taille de l'agrégat sur les différents paramètres physique du nanoplasma.

IV.2. Scénario de la dynamique de l'interaction

Dés le début de l'interaction, les atomes parents sont ionisés par le champ électrique du laser et la densité électronique à l'intérieur de l'agrégat augmente. Ensuite, on considère que les électrons libres ainsi formés acquièrent leur énergie cinétique par oscillation sous l'effet du champ électrique du laser qui augmente au cours du temps. Quand le champ électrique devient suffisamment grand pour que les électrons aient une énergie maximale d'oscillation de l'ordre de quelques KeV, ils peuvent quitter l'agrégat. Puis, dès que le rayon de l'agrégat augmente significativement sous l'action des forces de pression régnant à l'intérieur de l'agrégat, la densité électronique au sein de l'agrégat chute brutalement entraînant par conséquent une diminution importante des taux d'ionisation collisionelle [210].

Par ailleurs, les hypothèses de ce modèle dynamique sont les suivantes :

- Peu d'électrons quittent l'agrégat afin d'avoir une densité électronique suffisante pour que l'ionisation collisionnelle puisse se produire pendant l'interaction.
- Le seul mode de chauffage des électrons est leur oscillation dans le champ électrique du laser.
- Le champ électrique à l'intérieur de l'agrégat s'identifie au champ laser à l'extérieur de l'agrégat.
- L'ionisation collisionnelle se produit au sein d'un agrégat unique (amplitude maximale d'oscillation $\leq$ rayon de l'agrégat).
- La section efficace d'ionisation (ou d'excitation) en couche interne reste constante pour une énergie d'électron supérieure au seuil d'ionisation (respectivement d'excitation).

Enfin, suivant ce scénario et en l'analysant d'un point de vue collisionnel, le nombre total d'ions présentant une lacune en couche interne et qui sont contenus dans le volume focal effectif est donné par :

$$\boldsymbol{N_{ions\ ayant\ 1\ lacune} = n_{cycle\ opt.} \times N_{e^-} \times \sigma \times n_{at.loc.} \times x \times N_{agrégat\ ds\ vol.foc.eff.}} \qquad (IV.1)$$

Avec :

$n_{cycle\ opt.}$: Le nombre de cycle optique pendant lequel se produit l'ionisation en couche interne.

N_{e^-}: Le nombre d'électrons libres dans un agrégat.

$n_{at.loc.}$: La densité atomique locale au sein de l'agrégat.

σ: La section efficace d'ionisation (ou d'excitation) de la couche considérée (K pour l'argon, L pour le krypton et le xénon).

x : L'épaisseur effective de collision.

IV.3. Résultats et discussions

Sur la figure IV.1, on représente les variations des champs interne et externe en fonction du temps d'un agrégat du sodium Na (5000 atomes, I=5 10^{21} W/m^2, λ= 800 nm et τ=150 fs).

À partie de cette courbe, on voit que le champ interne présente deux pics le premier pic d'une valeur égale à 4,19.10^{10} V/m^2 correspond à l'amplification du champ laser, et le deuxième pic d'une valeur égale à 1, 83.10^{11} V/m^2 correspond à l'explosion de l'agrégat. Le champ externe augmente au fur à mesure que le temps passe jusqu'à atteindre sa valeur maximale puis il commence à s'abaisser après l'explosion de l'agrégat.

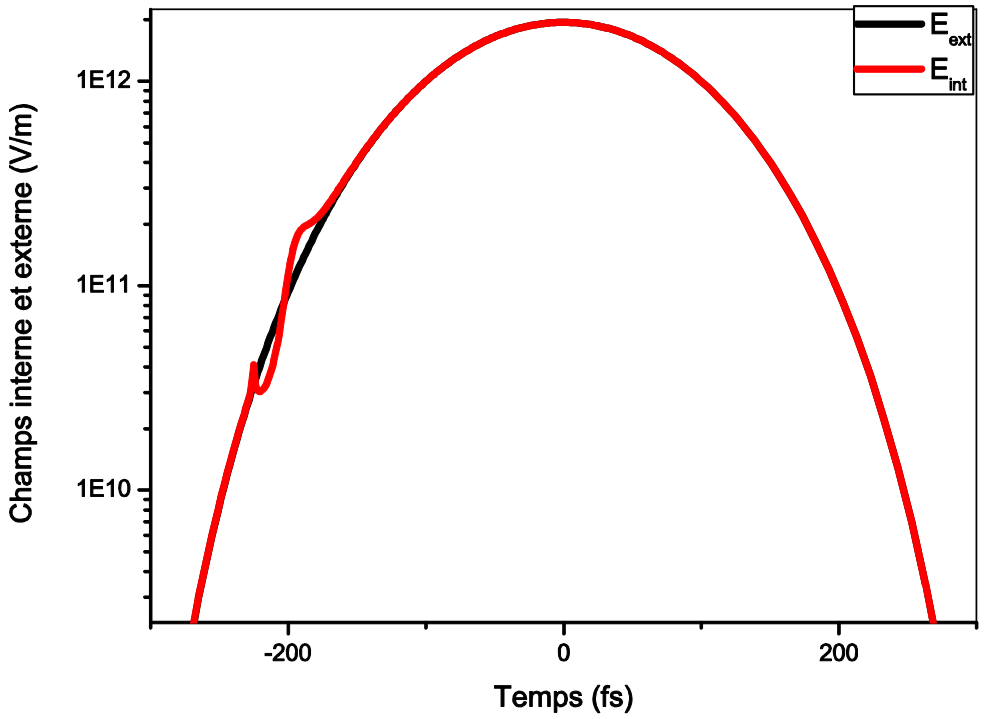


Figure IV.1 : *Variation des champs externe et interne en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour :* $I = 5.10^{21}$ *W/m², λ=800 nm et t=150 fs.*

La figure. IV.2, illustre la variation de l'énergie totale des électrons en fonction du temps, à comparer avec les agrégats de gaz rare, la courbe nous laisse déduire que les agrégats métalliques offrent la possibilité d'atteindre des énergies très élevées (de l'ordre de 45 KeV).

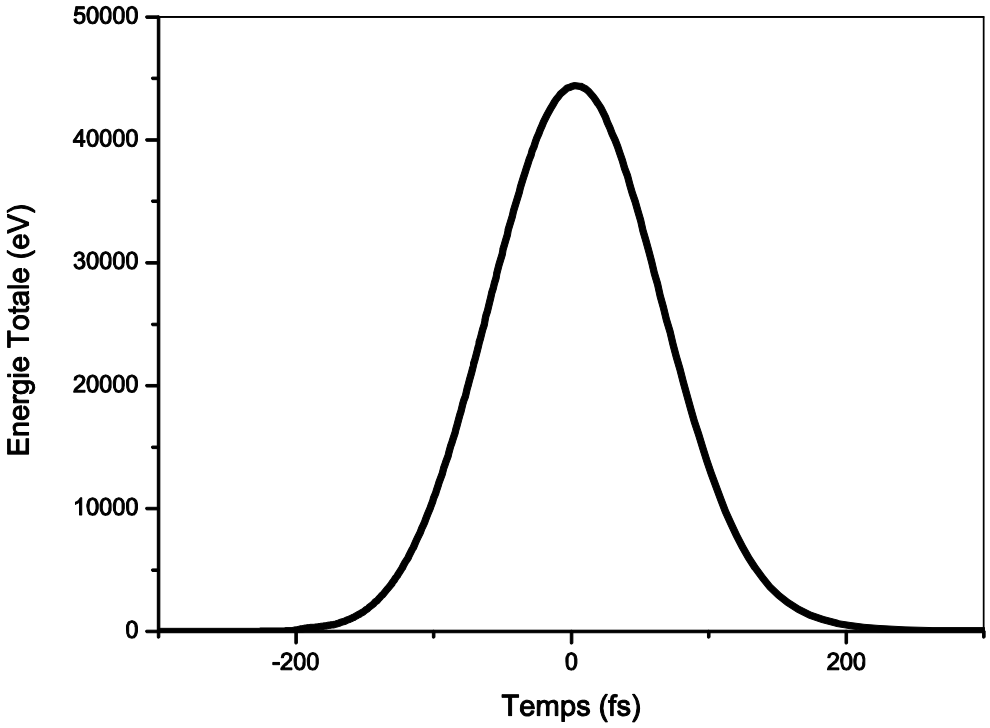


Figure IV.2 : *Variation de l'énergie totale en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I = 5.10^{21}$ W/m², λ=800 nm et t=150 fs.*

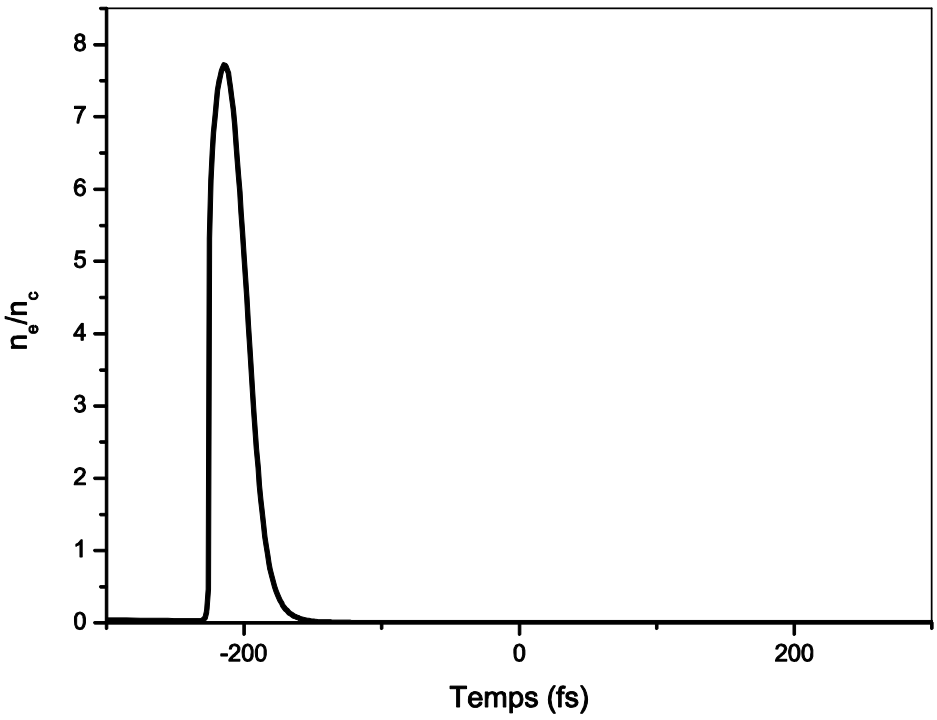


Figure IV.3 *: Variation de la densité électronique normalisée par la densité critique $\frac{n_e}{n_c}$ en fonction du temps pour: $I = 5.10^{21}$ W/m²,λ=800, N=5000 atomes et t=150 fs.*

La courbe représentant le rapport de la densité électronique sur la densité critique (n_e/n_c) en fonction du temps (figure IV.3), nous montre que (n_e/n_c) prend une valeur maximale importante ensuite elle décroit ($\frac{n_e}{n_c} = 7{,}76$) et cette courbe présente deux résonance la première (n_e/n_c = 3) apparait à τ_1= - 224,4 fs et correspond à une forte absorption avec amplification du champ interne et la deuxième résonance (n_e/n_c = 3) apparait à τ_2= -191,16 fs qui correspond à l'explosion finale de l'agrégat.

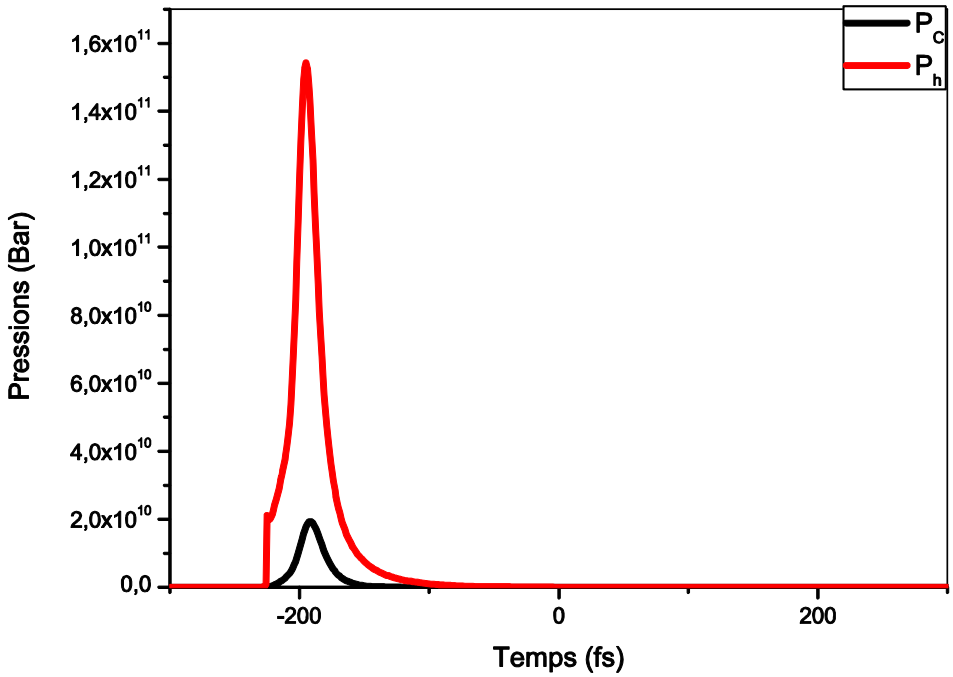


Figure IV.4 : *Variation des pressions hydrodynamique et colombienne en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour :* $I = 5.10^{21}$ *W/m², λ=800 nm et t=150 fs.*

La figure IV.4 représente les variations des pressions hydrodynamique et colombienne en fonction du temps. On remarque que la pression hydrodynamique et colombienne croient avec le temps, mais la valeur maximale atteinte par la pression colombienne (P_c = 1,95. 10^{10} Bar à t = - 191, 16 fs) est très petite à comparer avec la pression cinétique des électrons chauds (P_h = 1,55. 10^{11} Bar à t = - 191, 16 fs). Après l'explosion finale de l'agrégat on voit que les deux pressions s'abaissent et tendent vers 0.

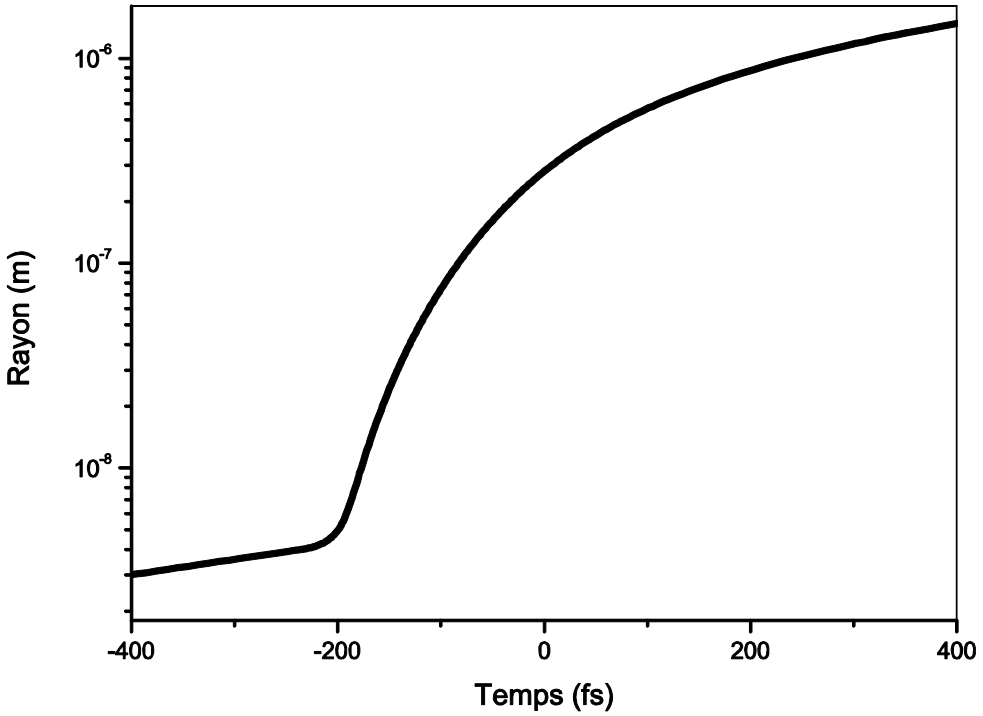


Figure IV.5 : *Variation de rayon du plasma en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour :* $I = 5.10^{21}$ *W/m², λ=800 nm et t=150 fs.*

La figure IV.5 illustre la variation du rayon du plasma en fonction du temps. Il est clair qu'il y a une augmentation du rayon avec le temps ce qui correspond au début de l'interaction entre le laser et l'agrégat ainsi l'expansion de ce dernier. La valeur du rayon R= 5,55 nm à t= -191,16 fs corresponde au moment de l'explosion de l'agrégat, après cette dernière on voit que la valeur du rayon tend vers une valeur infinis.

Sur la figure IV.6, on représente les variations de la pression hydrodynamique en fonction du rayon du plasma. Cette courbe montre qu'au cour de l'interaction, la valeur de la pression hydrodynamique augmente d'un seul coup pour atteindre sa valeur maximale qui est de $1{,}55.10^{11}$ Bar pour un Rayon R = 5,55 nm (explosion de l'agrégat) mais après l'explosion de l'agrégat elle décroit rapidement avec la variation du rayon jusqu'à ce qu'elle s'annule.

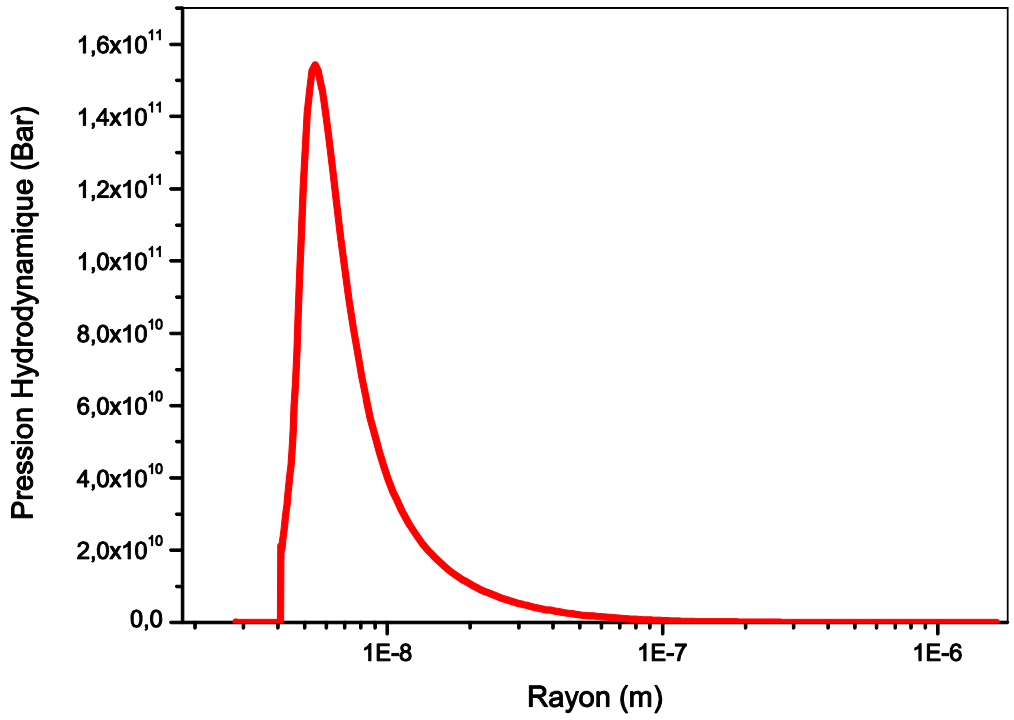


***Figure IV.6** : Variation de la pression hydrodynamique en fonction du rayon pour l'agrégat du sodium ($I = 5.10^{21}$ W/m², 5000 atomes, λ=800 nm et t=150 fs.*

IV.3.1. Effet de la variation de l'intensité du laser

L'intensité du laser incident est un paramètre qui peut jouer un rôle important dans la dynamique de l'interaction laser – agrégats. Du moins, les études antérieures dans le domaine de l'interaction laser – matière réalisées pour des atomes, des molécules ou des solides ont mis en évidence un réel effet de l'intensité sur l'interaction et qu'on peut noter :

Pour l'ionisation d'atomes et de molécules en champ laser intense, il a été montré théoriquement [218] et observé expérimentalement [219] qu'une augmentation de l'ellipticité de la radiation laser incidente induit à une diminution des taux d'ionisation.
Dans le cadre de l'interaction laser – solide, la polarisation joue un rôle très important dans le contrôle de l'efficacité de production d'un plasma chaud et dense. En effet, la polarisation fait augmenter le chauffage de la surface par rapport à une polarisation linéaire P [219].

Nous voyons, ainsi que l'effet de l'intensité dépend fortement du système ainsi que dans notre étude. Si nous examinons maintenant de plus près l'influence de l'intensité du laser incident sur quelques paramètres intervenant lors de la dynamique de l'interaction laser – agrégats, il ressort que :

Pour le champ interne représenté sur la figure (IV.7) Il est possible de comparer les trois courbes des champs internes obtenu pour Trois intensités différentes. On peut constater que pour I = 1.10^{21}W /m^2 on obtient le premier pic à $t_1 = -209{,}6\ fs$ et pour I= 7.10^{19} W/m^2 on obtient le premier pic à $t_2 = -196{,}7\ fs$ par contre I= 3.10^{18} W/m^2 on obtient le premier pic à $t_3 = -176{,}6\ fs$ alors on déduis que lorsqu'on utilise une grande intensité du laser l'ionisation des atomes constituant l'agrégat s'effectue plus rapidement, de plus l'augmentation de l'intensité permet d'obtenir des valeurs très élevés du champ interne, cette dernière est expliqué par l'augmentation du nombre d'électrons libres.

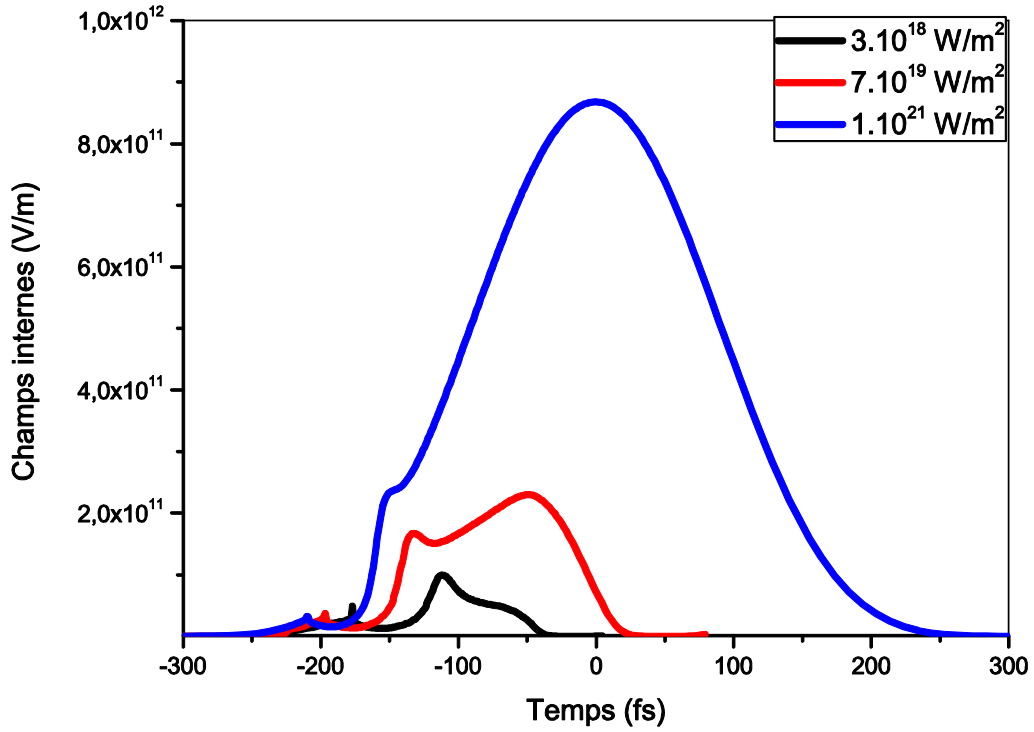


***Figure IV.7** : Variation des champs internes en fonction du temps pour: (λ=800nm, N=5000 atomes et t=150 fs) et différentes valeurs d'intensités du laser.*

La figure IV.8 représente les variations de l'énergie totale en fonction du temps pour différentes valeurs de l'intensité laser. On peut constater que pour I= 1.10^{21} W/m^2 on obtient une énergie ($\approx 9000\ eV$) et pour I= 7.10^{19} W/m^2 on obtient une énergie ($\approx 0.7\ KeV$) par contre I= 3.10^{18} W/m^2 on obtient une énergie totale ($\approx$ 0.18 KeV), alors on trouve que lorsqu'on utilise une grande intensité on obtient une énergie totale plus élevée.

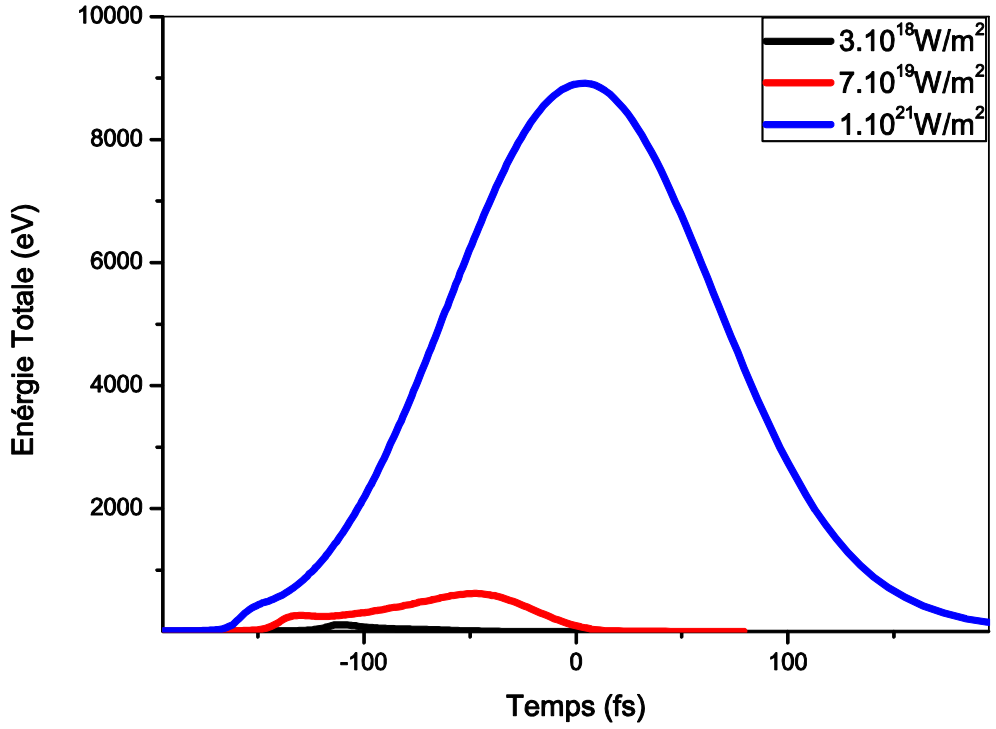


Figure IV.8 *: Variation de l'énergie totale en fonction du temps pour: (λ=800nm, N=5000 atomes et t=150 fs) et différentes valeurs d'intensités du laser.*

Sur la figure IV.9 illustre la variation de la densité électronique n_e normalisée par la densité critique n_c, $(\frac{n_e}{n_c})$ en fonction du temps pour différentes valeurs de l'intensité du laser. On remarque qu'au fur et à mesure que l'intensité du laser augmente le rapport de la densité électronique augmente aussi. Lorsque I= 1.10^{21} W/m^2, on obtient la plus grande densité $\frac{n_e}{n_c}$ =16,91, alors que pour I= 7.10^{19} W/m^2 la densité $\frac{n_e}{n_c}$ = 15,50, et pour I= 3.10^{18} W/m^2 on obtient une valeur de densité $\frac{n_e}{n_c} = 11{,}81$. Ce qui veut dire que lorsque l'intensité du laser croît, la densité électronique croît aussi. On remarque aussi un légère déplacement des courbes de $\frac{n_e}{n_c}$, c'est à dire que l'intensité du laser augmente et la formation du nanoplasma devient plus rapide.

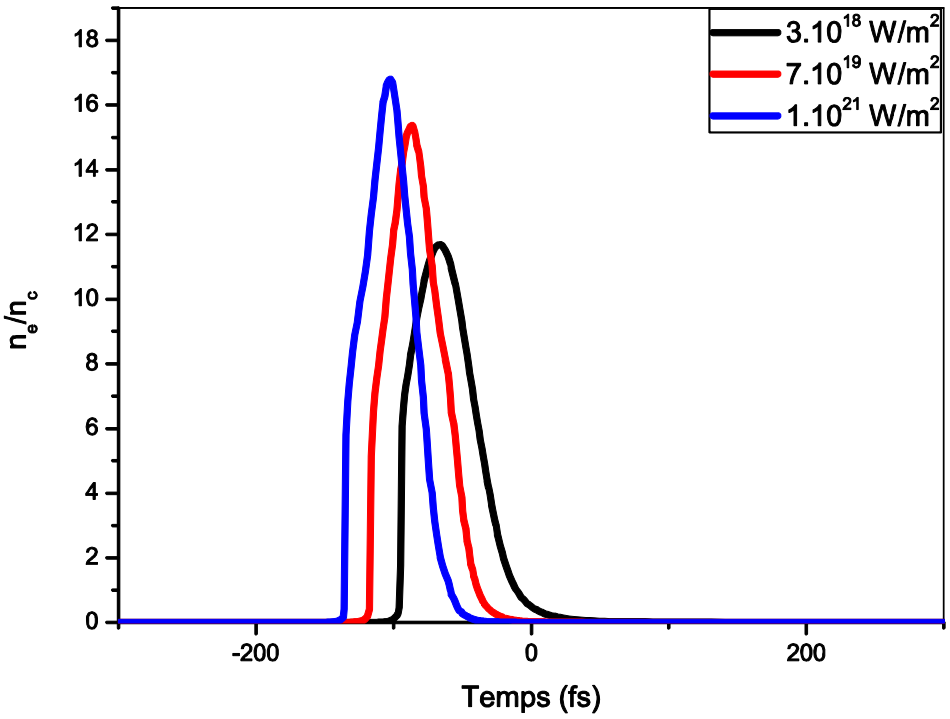


Figure IV.9 *: Variation de la densité électronique normalisée par la densité critique* $\frac{n_e}{n_c}$ *en fonction du temps pour: λ=800, N=5000 atomes, t=150 fs, et différentes valeurs d'intensités du laser.*

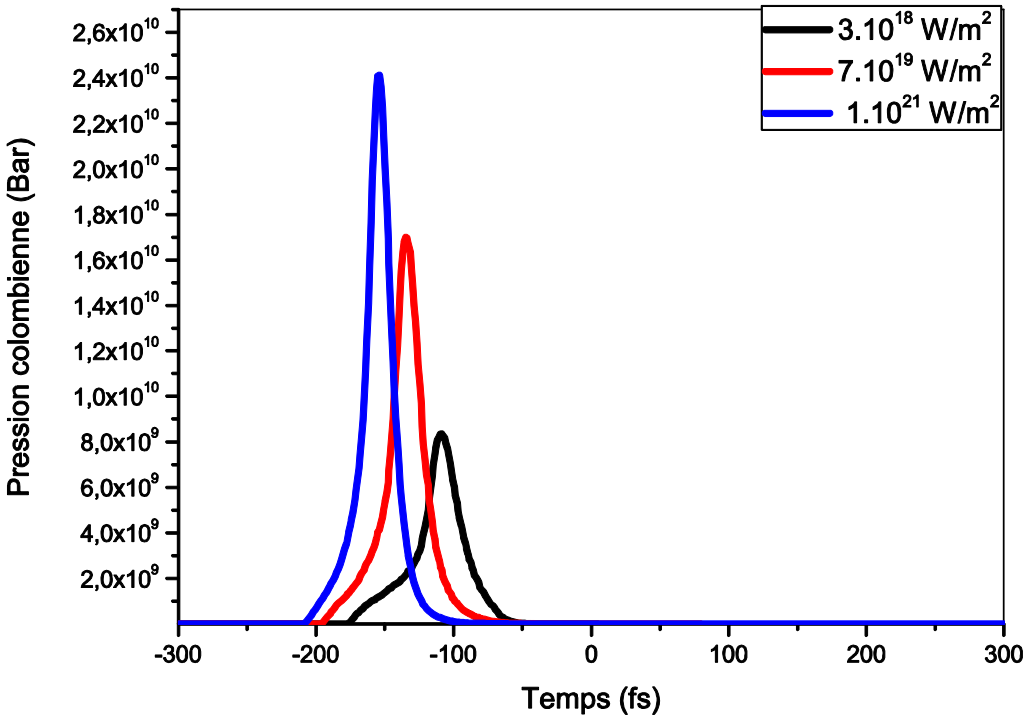


Figure IV.10 : *Variation des pressions colombiennes en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : λ=800 nm, t=150 fs, et différentes valeurs d'intensités du laser.*

La figure IV.10 représente la variation de P_C en fonction du temps. On remarque qu'au fur et à mesure que l'intensité augmente la pression colombienne augmente aussi. Lorsque $I = 1.10^{21}$ W/m^2, on obtient la plus grande pression P_c =2,43.10^{10} Bar, et pour $I = 7.10^{19}$ W/m^2 on obtient la pression P_c=1,72.10^{10} Bar, et pour $I = 3.10^{18}$ W/m^2 on obtient la plus petite pression $P_C = 8{,}54.10^9$ Bar. On remarque aussi un décalage temporel du pic de la pression. En faisant une comparaison de la pression correspondante aux trois intensités $I = 1.10^{21}$ W/m^2, $I = 7.10^{19}$ W/m^2, et $I = 3.10^{18}$ W/m^2 on constate un effet sur le temps de l'expansion pour l'intensité $I = 1.10^{21}$ W/m^2, on obtient une expansion plus avancée avec une pression colombienne plus grande, c'est à dire lorsque l'intensité augmente l'expansion de l'agrégat est plus rapide avec une pression plus grande.

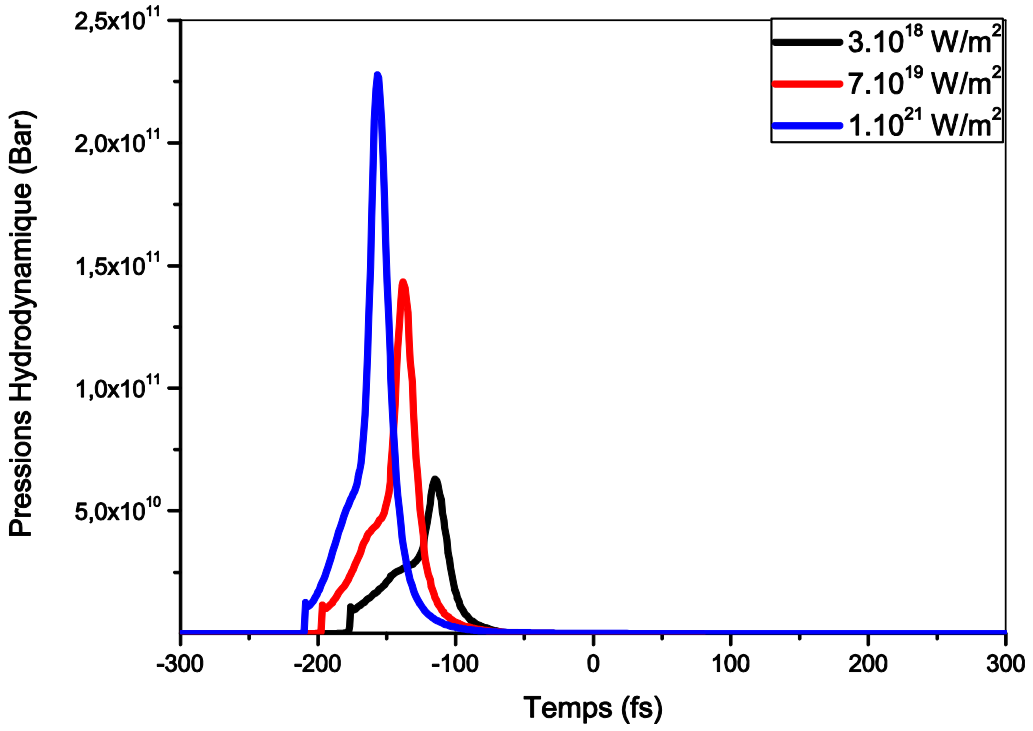


Figure IV.11 : *Variation des pressions hydrodynamiques en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : λ=800 nm, t=150 fs, et différentes valeurs d'intensités du laser.*

La figure IV. 11 Illustre la variation des pressions hydrodynamique en fonction du temps. On constate que cette dernière se comporte de la même manière que les pressions colombienne en fonction du temps. Lorsque $I = 1.10^{21}$ W/m^2, on obtient la plus grande pression P_h = 2,3.10^{11} Bar, et pour $I = 7.10^{19}$ W/m^2 on obtient la pression P_h=1,46.10^{11} Bar, alors que pour $I = 3.10^{18}$ W/m^2 on obtient la plus petite pression $P_h = 6{,}42.10^{10}$. On remarque aussi un

décalage temporel du pic de la pression. En faisant une comparaison de la pression correspondante aux trois intensités $I = 1.10^{21}$ W/m^2, $I = 7.10^{19}$ W/m^2, et $I = 3.10^{18}$ W/m^2 on constate un effet sur le temps de l'expansion et l'explosion. Pour l'intensité $I = 1.10^{21}$ W/m^2, on obtient une expansion et explosion plus avancée avec une pression hydrodynamique plus grande.

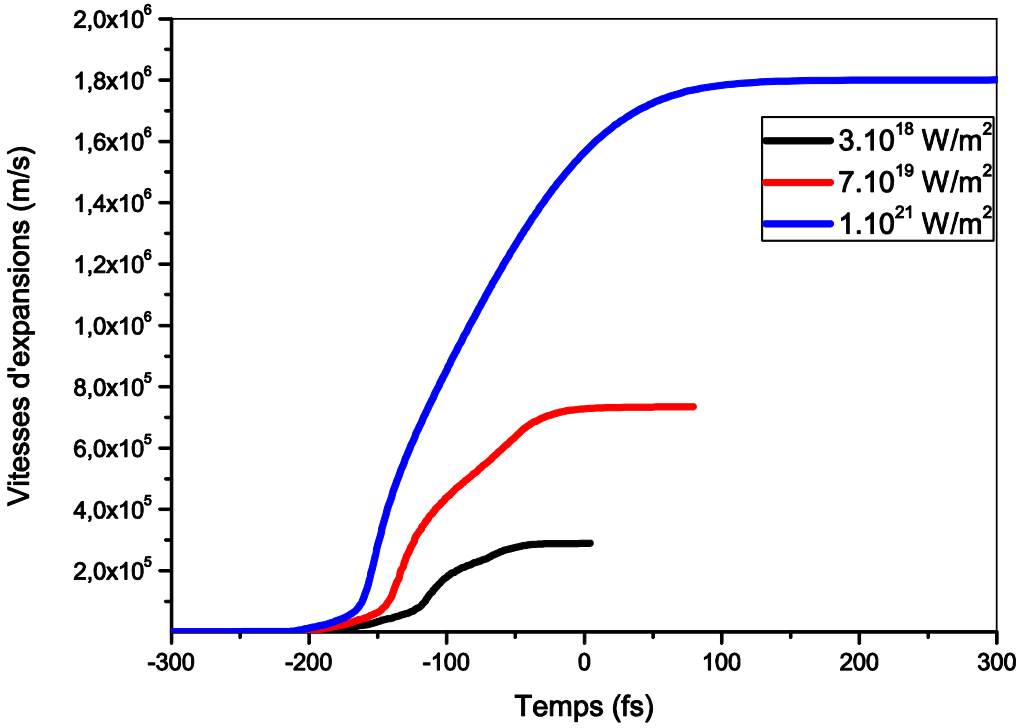


Figure IV.12 : *Variation des vitesses d'expansions en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : λ=800 nm, t=150 fs, et différentes valeurs d'intensités du laser.*

La figure IV.12 représente la variation des vitesses d'expansion en fonction du temps pour différentes valeurs de l'intensité du laser. On remarque que lorsque le temps est inferieur à $t < -200fs$, la vitesse reste constante et pratiquement nulle avant l'interaction. Aux temps, $t > -200fs$, la vitesse augmente au maximum au moment de l'interaction et l'expansion de l'agrégat, pour $I = 1.10^{21}$ W/m^2 la vitesse d'expansion v_{exp} =1,8.10^6 m/s, et pour $I = 7.10^{19}$ W/cm^2 la vitesse d'expansion $v_{exp} = 7{,}5.10^5$ m/s, tandis que pour $I = 3.10^{18}$ W/m^2 la vitesse d'expansion $v_{exp} = 3.10^5 m/s$. La valeur maximale et constante corresponde à l'expansion et l'explosion finale de l'agrégat. Donc, lorsque l'intensité augmente la vitesse d'expansion devient très rapide et prend des valeurs très grandes.

IV.3.2. Effet de la longueur d'onde

L'effet de la longueur d'onde sur la dynamique de l'interaction intervient principalement dans les mécanismes de chauffage des électrons. Cet effet fut un argument important pour établir la validité du modèle faisant intervenir le mouvement collectif et cohérent des électrons expliquant la présence de lacunes en couches internes. Nous avons étudié l'effet de la variation de la longueur d'onde seulement à travers quelques propriétés d'agrégats métalliques du sodium soumis à un champ laser femtoseconde intense. Les trois valeurs des longuzurs d'onde utilisés sont : λ=390 nm, λ=800 nm, λ=1100 nm.

Dans la figure IV.13, on représente la variation des champs interne en fonction du temps. On remarque que lorsqu'on applique des petites longueurs d'onde l'explosion de l'agrégat est rapide.

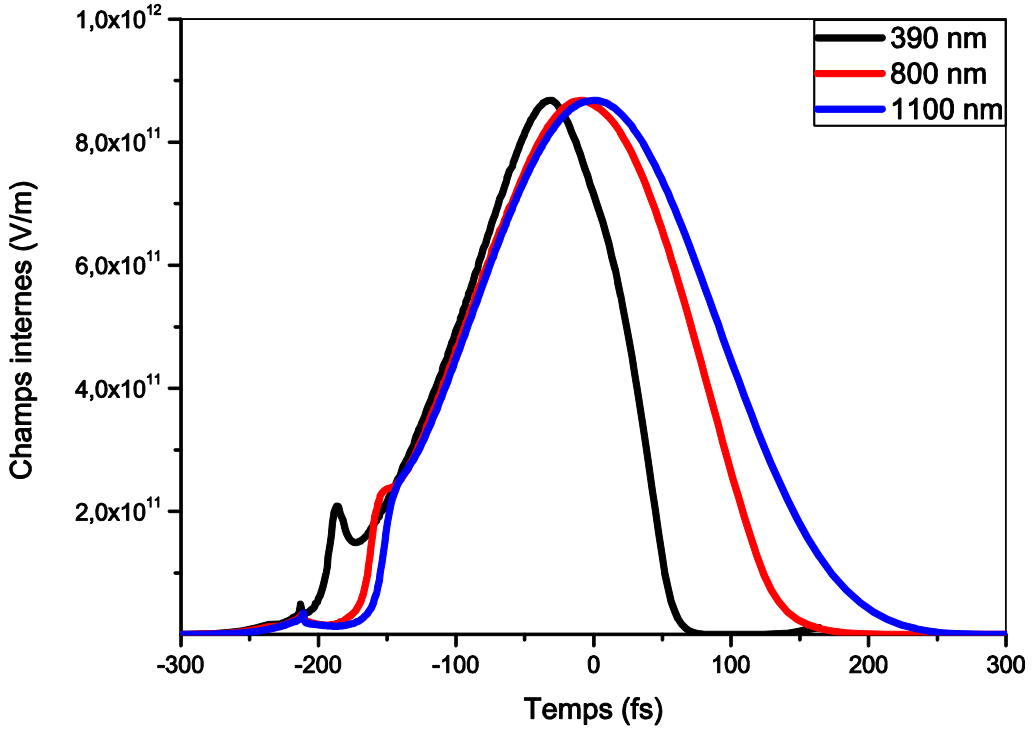


Figure IV.13 : *Variation des champs internes en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21} W/m^2$, t=150 fs, et différentes valeurs de longueur d'onde.*

La figure IV.14 illustre la variation des énergies totales en fonction du temps pour différentes valeurs de la longueur d'onde. On remarque que pour λ=1100 nm on obtient une énergie ≈ 16,65 KeV et pour λ=800 nm on obtient une énergie ≈ 9 KeV par contre lorsque λ=390 nm on obtient une énergie totale ≈ 2,24 KeV, alors on déduit que lorsqu'on utilise une grande longueur d'onde on obtient une énergie totale plus élevée.

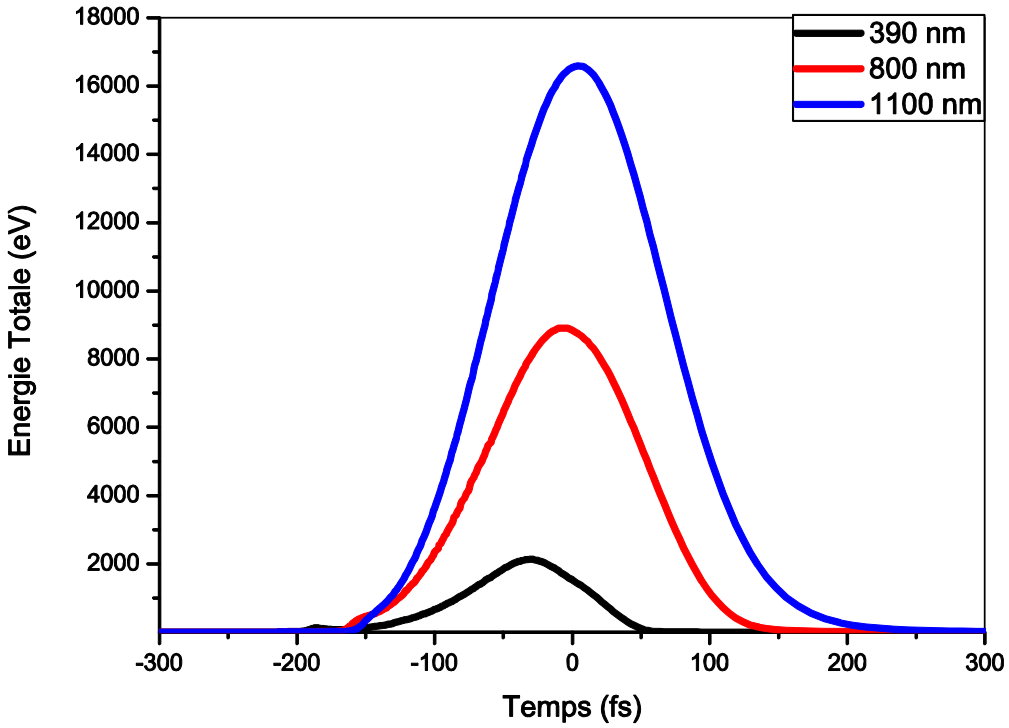


Figure IV.14 : *Variation des énergies totale en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21} W/m^2$, t=150 fs, et différentes valeurs de longueur d'onde.*

La variation de la densité électronique normalisée par la densité critique pour différentes valeurs de la longueur d'onde en fonction du temps est représentée sur la figure IV.15. On peut clairement constater que pour les trois longueurs d'onde utilisées, la première résonance se passe au même temps et la valeur du rapport n_e/n_c augmente avec l'augmentation de la longueur d'onde. Par contre la deuxième résonance survient pour λ=390 nm (à t = -188 fs), puis λ=800 nm (à t = -157 fs), ensuite λ=1100 nm (à t = -145 fs) ce qui nous laisse déduire que l'explosion de l'agrégat se passe plus vite pour les petites longueurs d'ondes.

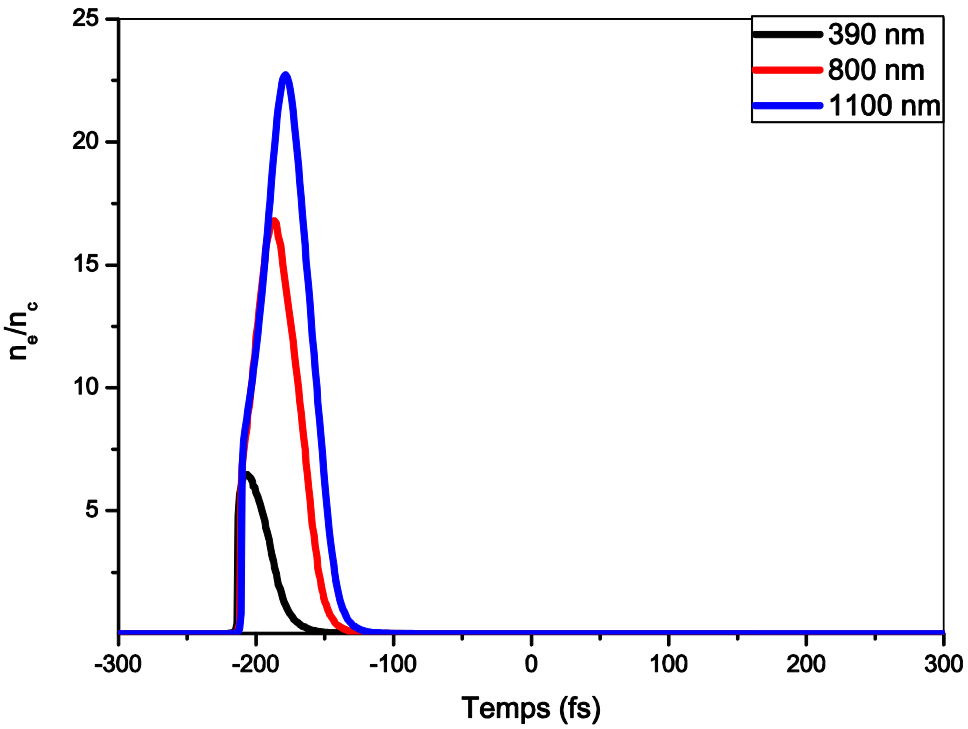


Figure IV.15 : *Variation de la densité électronique normalisée par la densité critique n_e/n_c en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21} W/m^2$, t=150 fs, et différentes valeurs de la longueur d'onde.*

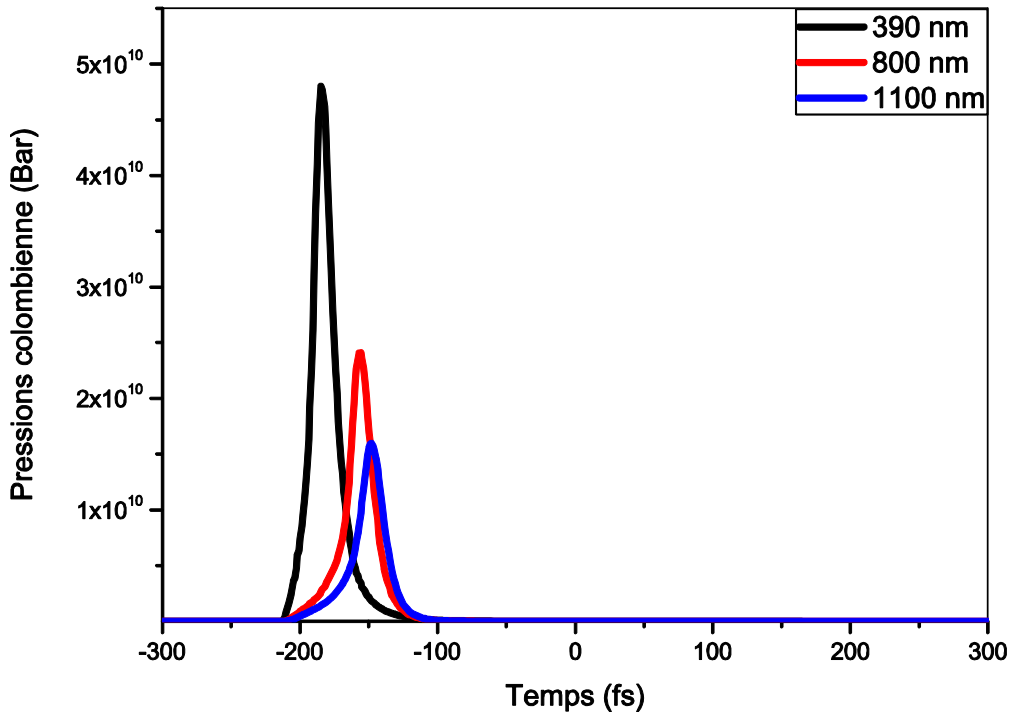


Figure IV.16 : *Variation des pressions colombiennes en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21} W/m^2$, t=150 fs, et différentes valeurs de la longueur d'onde.*

Sur la figure IV.16 est représenté les variations de P_C en fonction du temps pour différentes valeur de la longueur d'onde. On remarque qu'au fur et à mesure que la longueur d'onde augmente la pression colombienne décroit. On obtient la plus grande pression P_c= 4,84 Bar pour λ=390 nm, et pour λ=800 nm on P_c=2,43.10^{10} Bar, et pour λ=1100 nm on obtient la plus petite pression P_c=1,62.10^{10} Bar. On remarque aussi un décalage temporel du pic de la pression colombienne. En faisant une comparaison de la pression correspondante aux trois longueurs d'onde différentes (λ=390 nm et λ=800 nm, et λ=1100 nm) on constate qu'il y a un effet sur le temps de l'ionisation pour la longueur d'onde λ=390 nm et on obtient une ionisation plus avenacée avec une pression colombienne plus grande.

La figure IV.17 Illustre la variation des pressions hydrodynamiques en fonction du temps. On constate que cette dernière se comporte de la même manière que les pressions colombiennes en fonction du temps.

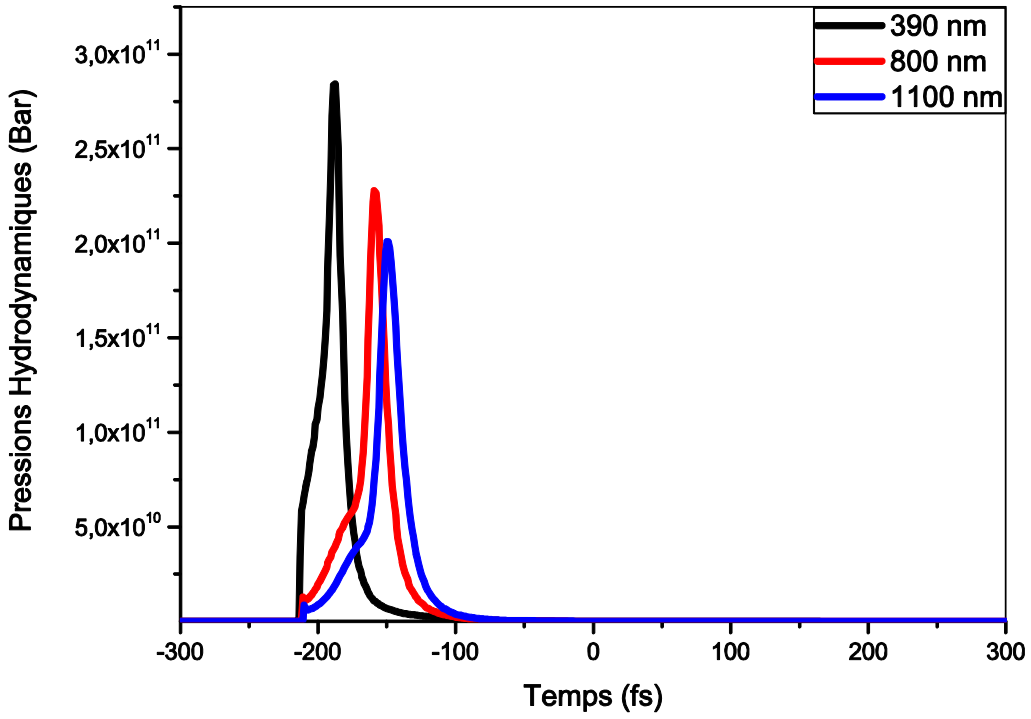


Figure IV.17 : *Variation des pressions hydrodynamique en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : I=5.10^{21}W/m^2, t=150 fs, et différentes valeurs de la longueur d'onde.*

Lorsque λ=390 nm, on obtient la plus grande pression P_h = 2,86.10^{11} Bar, et pour λ=800 nm on obtient la pression P_h=2,3.10^{11} Bar, et pour λ=1100 nm on obtient la plus petite pression $P_h = 2{,}03.\,10^{11}$ Bar. On remarque aussi un décalage temporel du pic de la pression. En

faisant une comparaison de la pression correspondante aux trois longueurs d'onde (λ=390, λ=800 nm, λ=1100 nm) on constate une différence dans les temps de l'expansion et l'explosion d'une tel façon que pour λ=390 nm, on obtient une expansion et explosion plus avenacée avec une pression hydrodynamique plus grande.

IV.3.3. Effet de nombre d'atome

IV.3.3.1. Effet du nombre d'atome sur le champ interne et externe

Les figures (IV.18) et (IV.19) représentent l'effet de la variation du nombre d'atome qui se trouve à l'intérieur de l'agrégat étudié sur les champs externes et internes. Pour les deux figures on voit que la variation du nombre d'atome n'a aucun effet sur le champ externe contrairement au champ interne. Dans les deux cas la courbe qui exprime la variation du champ interne en fonction du temps est constituée de deux pics caractéristiques : le premier pic correspond à l'amplification du champ interne et le début de la formation du nanoplasma, le deuxième pic correspond à l'explosion de l'agrégat. Pour les deux nombres d'atome utilisés c'est-à-dire n=5 10^6 atomes et n=5 10^8 atomes le premier pic apparait en même temps presque à $t = -208{,}46$ fs mais donne deux valeur différentes du champ interne et qui sont respectivement $E_{int} = 4.47\ 10^{10}$ V/m et E_{int} = 4.07 10^{10} V/m. Le temps d'apparition du deuxième pic est de t= -30.8 fs pour n=5 10^6 et donne E_{int} = 1,33 10^{12} V/m alors qu'on note pour n=5 10^8, t= 235,8 fs et E_{int} = 2,41.10^{11} V/m. On observe aussi sur la figure IV.18 une forte amplification de E_{int} ce qui donne une grande valeur de cette dernière donc on dit qu'on a une divergence de E_{int} qu'est annulée après par l'ajout du terme d'amortissement collision-surface. Alors on constate que le temps de l'explosion de l'agrégat est directement proportionnel au nombre d'atomes au sein de l'agrégat.

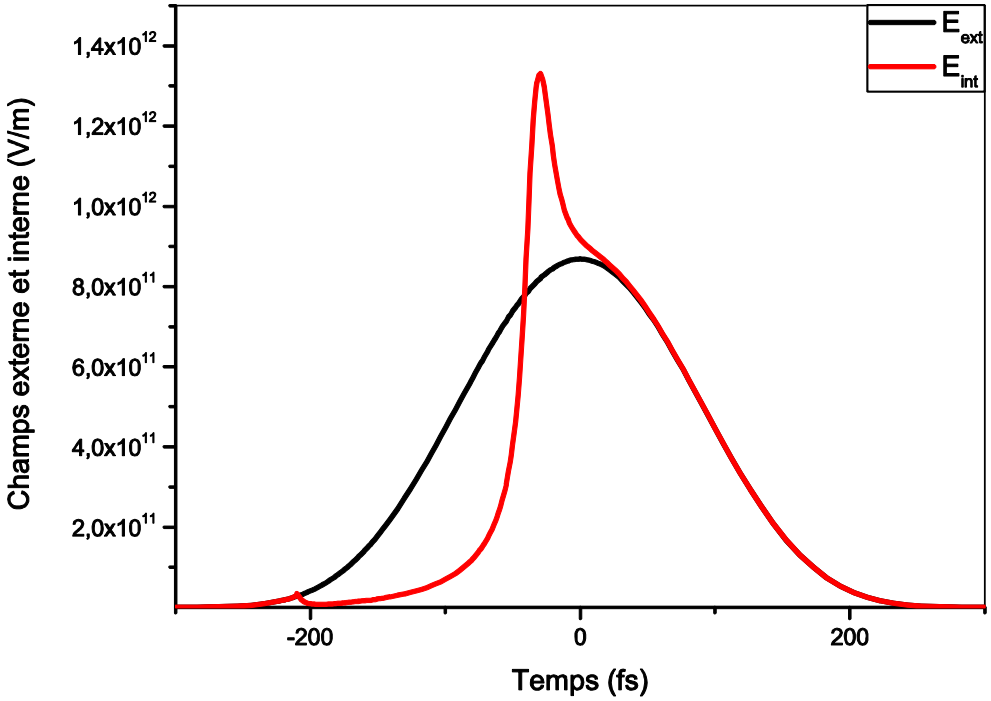


Figure IV.18: *Variation des champs interne et externe en fonction du temps de l'agrégat du Na (5.10^6 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21} W/m^2$, $\lambda=800$ nm, $t=150$ fs.*

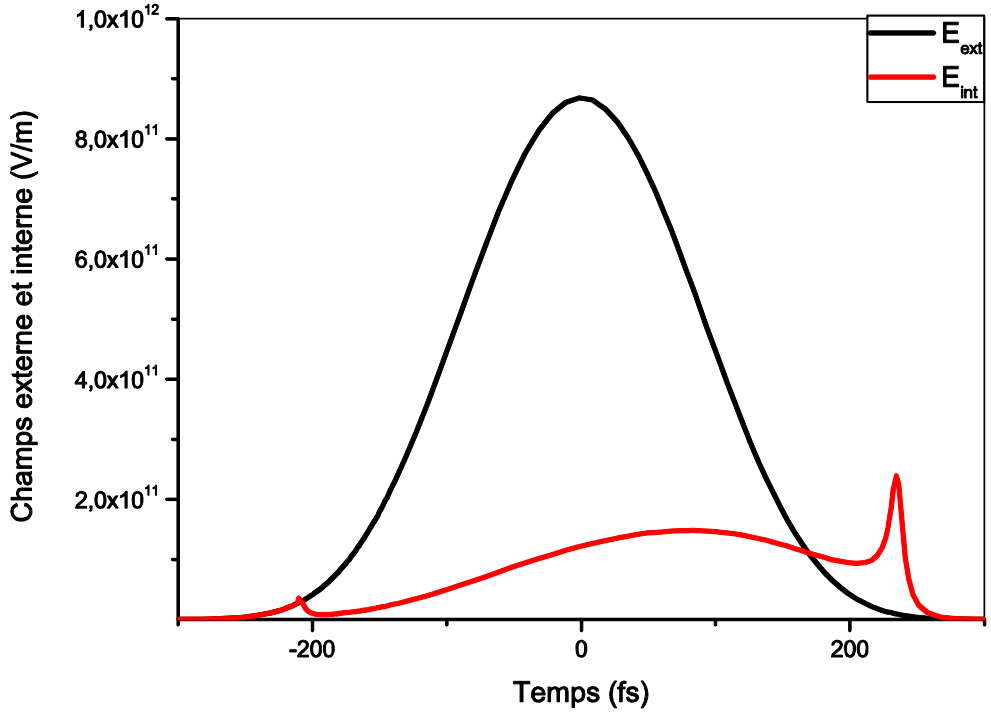


Figure IV.19 : *Variation des champs interne et externe en fonction du temps de l'agrégat du Na (5.10^8 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21} W/m^2$, $\lambda=800$ nm, $t=150$ fs.*

IV.3.3.2 Effet du nombre d'atome sur les énergies totales

La figure IV.20 et IV.21 expriment l'effet de la variation des énergies totale en fonction du temps pour deux nombre d'atomes différents

D'après ces deux courbes on voix que la valeur de l'énergie totale est égale à 8.97 KeV lorsque le nombre d'atomes de l'agrégat est de 5000 atomes par contre lorsque le nombre d'atome est de n=5 10^6 atomes la valeur de l'énergie totale devient plus importante E_{tot} = 19.8 KeV donc, il est à noter que plus le nombre d'atomes de l'agrégat augmente plus la valeur de l'énergie totale est élevée.

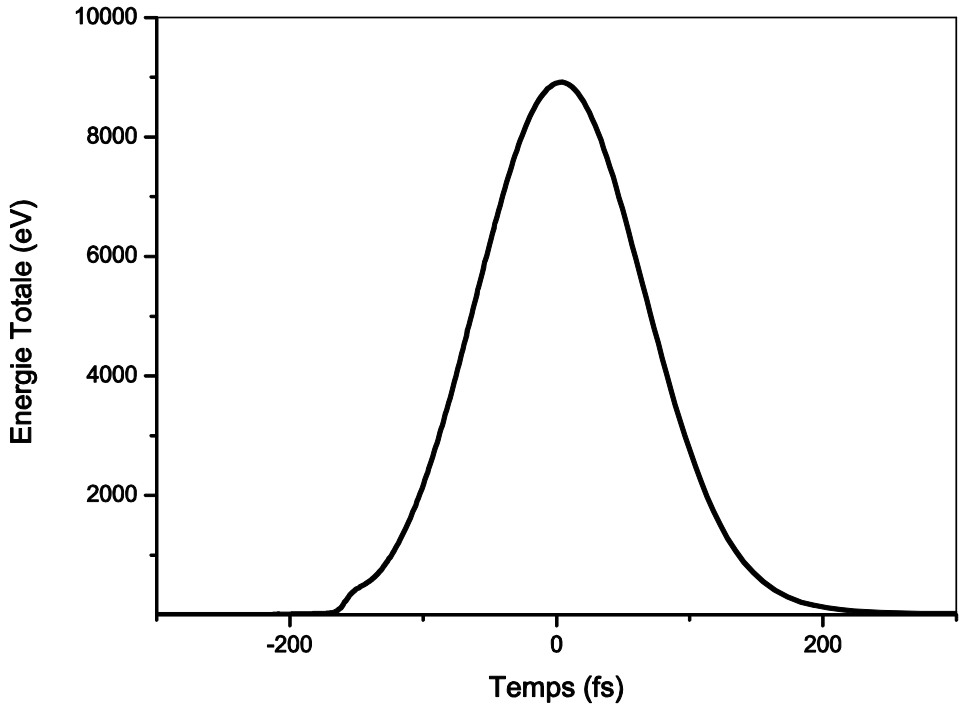


Figure IV.20 : *Variation des énergies totales en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : I=5.10^{21}W/m^2,* λ=800 nm, *t=150 fs.*

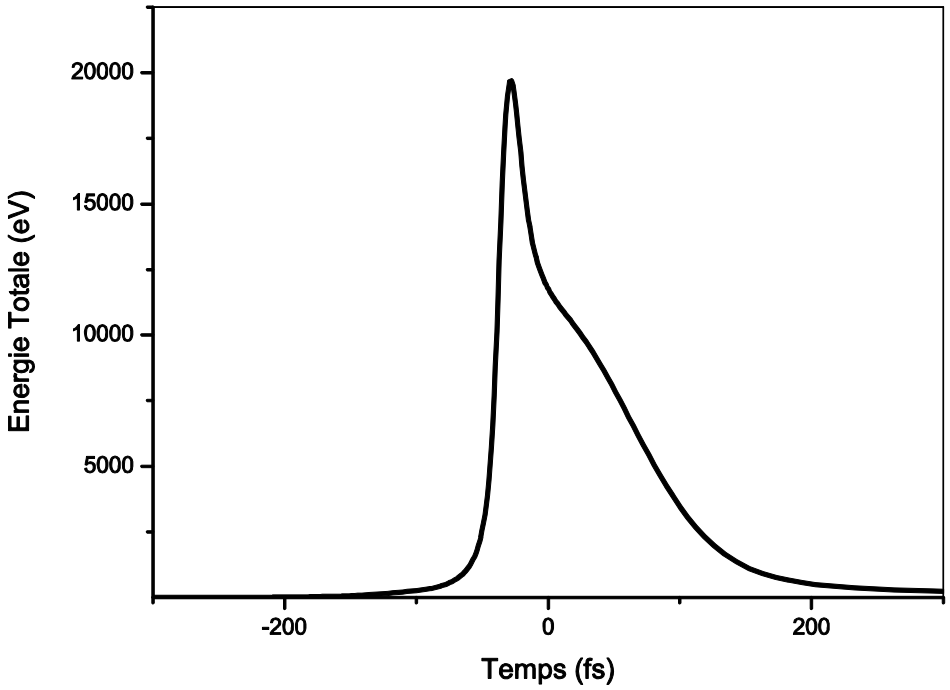


Figure IV.21 : *Variation des énergies totales en fonction du temps de l'agrégat du Na (5.10^6 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21}W/m^2$,* λ=800 nm, *t=150 fs.*

IV.3.3.3. Effet du nombre d'atome sur la densité électronique normalisé par la densité critique

La variation de la densité électronique normalisée par la densité critique n_e/n_c en fonction du temps de l'agrégat de Na constitué de n=5000 atomes et n=5 10^6 atomes est respectivement représenté dans la figure IV.22 et IV.23

Pour un agrégat contenant 5000 atomes la valeur maximale du rapport n_e/n_c est de 16.9, le temps de la première résonnance est de t=-209.46 fs et celui de la deuxième résonance est de t=-152.79 fs alors que pour un agrégat contenant 5.10^6 atomes la valeur maximale du rapport n_e/n_c est de 30.33 et le temps de la première et la deuxième résonance sont respectivement t=-209.46 fs et t=-31.53 fs ce qui nous permet de constater que la valeur maximale du rapport de la densité électrique sur la densité critique est plus grande lorsque le nombre d'atomes est plus élevé et le temps de la deuxième résonnance est plus long.

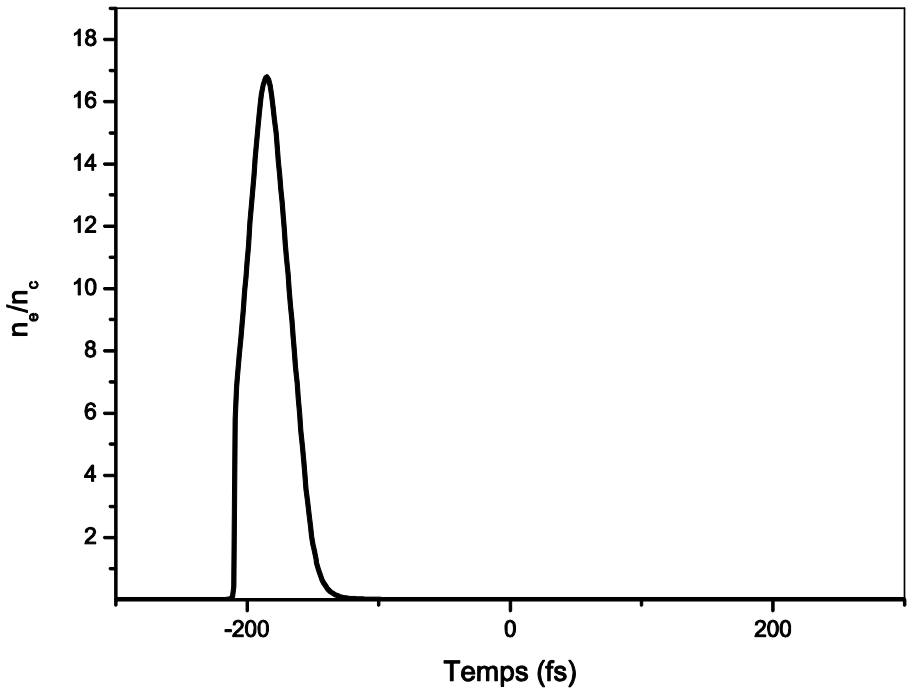


Figure IV.22: *Variation de la densité électronique normalisée par la densité critique n_e/n_c en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21} W/m^2$,* λ=800 nm, *t=150 fs.*

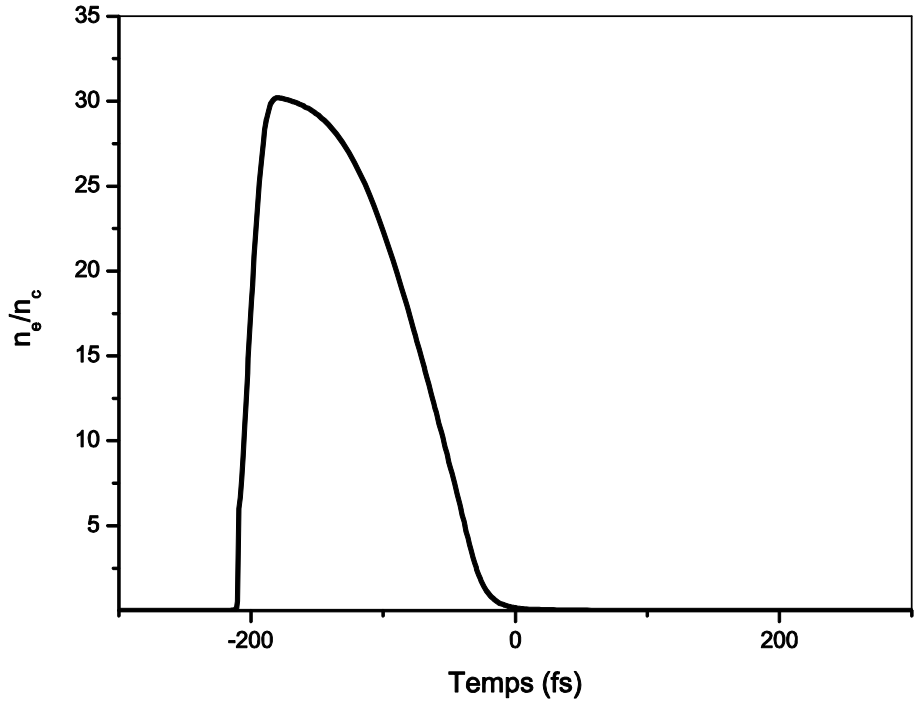


Figure IV.23: *Variation de la densité électronique normalisée par la densité critique n_e/n_c en fonction du temps de l'agrégat du Na (5.10^6 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21} W/m^2$,* λ=800 nm, *t=150 fs.*

IV.3.3.4. Effet du nombre d'atomes sur les pressions colombienne et hydrodynamique

L'effet observé sur la pression colombienne P_c et la pression hydrodynamique P_h lorsque le nombre d'atomes de l'agrégat varie est illustré dans les figures IV.24 IV.25

Pour n =5000 atomes la valeur maximale de $P_h = 2.3\ 10^{11}$ Bar et $P_c = 2.3\ 10^{10}$ Bar à t=-153,54 fs par contre pour n= $5\ 10^6$ atomes $P_h = 1.63\ 10^{13}$ Bar et $P_c = 1.57\ 10^{12}$ Bar à t=-31 fs par conséquent on dit que l'augmentation du nombre d'atomes de l'agrégat permet d'obtenir des valeurs élevées de la pression hydrodynamique et colombienne et le temps de l'explosion de l'agrégat devient plus long.

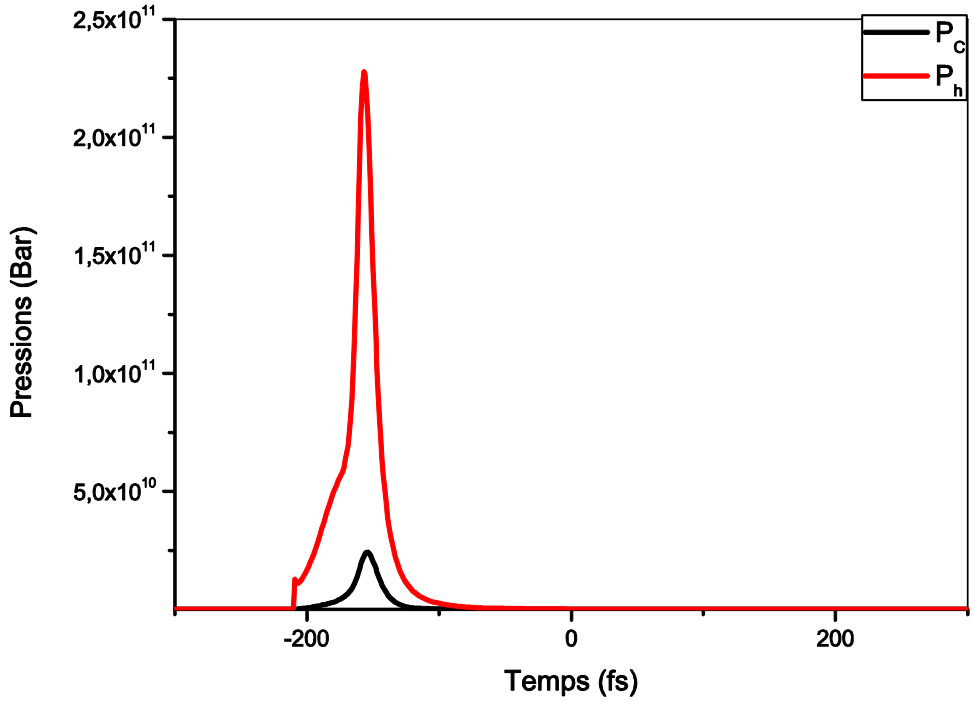


Figure IV.24: *Variation des pressions colombienne et hydrodynamique en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21} W/m^2$, λ=800 nm, t=150 fs.*

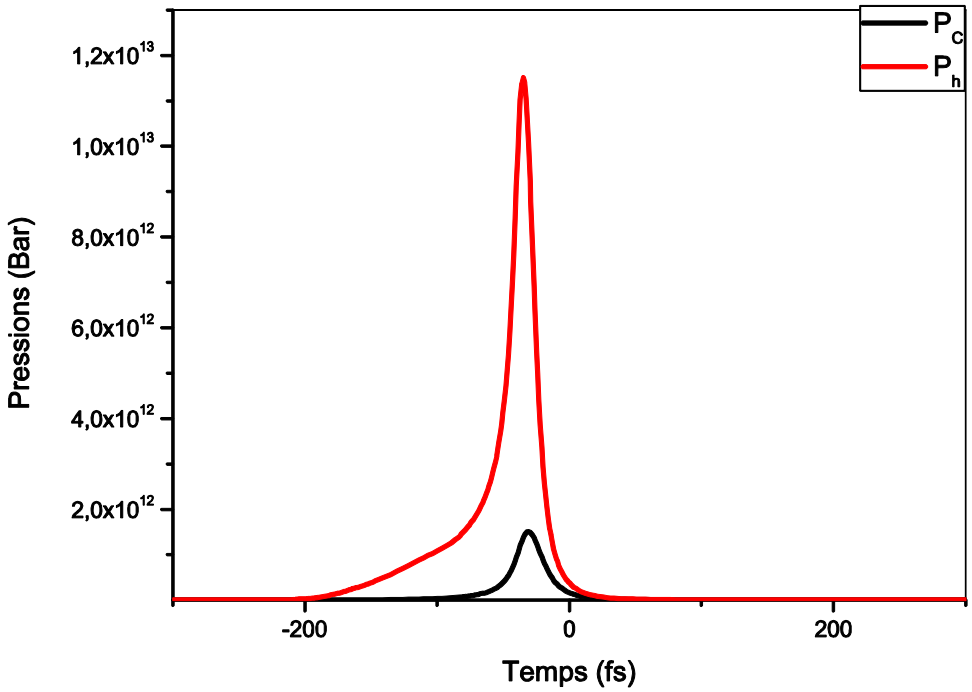


Figure IV.25: *Variation des pressions colombienne et hydrodynamique en fonction du temps de l'agrégat du Na (5.10^6atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense pour : $I=5.10^{21} W/m^2$, $\lambda=800$ nm, $t=150$ fs.*

IV.4. Conclusion

Dans ce dernier chapitre, on a étudié la dynamique d'ionisation, d'expansion et d'explosion de l'agrégat de Na soumis à un champ laser femtoseconde intense par le modèle nanoplasma.

On a trouvé que l'irradiation des agrégats métalliques (Na) par un champ laser femtoseconde intense produit un chauffage rapide du cluster par les différents processus de collisions, conduit à une expansion très rapide du cluster et produit aussi des électrons et des ions très énergétiques qui conduisent à l'émission des électrons chauds. On a trouvé que la pression coulombienne est moins importante que la pression hydrodynamique, donc la pression hydrodynamique est responsable de la dynamique d'ionisation et d'explosion de l'agrégat.

Le fait d'utiliser une intensité élevée du laser et des grandes longueurs d'onde permet d'obtenir des valeurs plus grandes de l'énergie totale. Donc la variation de la longueur d'onde et de l'intensité du laser a une grande influence sur l'énergie totale des électrons de l'agrégat métallique du sodium. Le rapport de la densité électronique sur la densité critique dépend des longueurs d'ondes utilisées.

Conclusion générale

Conclusion générale

Au cour de ce travail de thèse, qui s'est intéressé à l'étude de l'interaction d'un laser femtoseconde dans une gamme d'éclairement allant de 10^{14} à 10^{17} W/cm^2 avec des agrégats de Sodium (Na) contenant 5000 atomes a été effectuée par l'intermédiaire du modèle nanoplasma.

Afin de pouvoir réaliser notre étude, nous avons effectué quelques modifications dans le code nanoplasma; le coefficient du terme d'amortissement dans l'expression de la fréquence de collision (ν), les moments des électrons, l'enveloppe gaussienne du champ laser ainsi l'expression du logarithme coulombien par rapport à celle utilisée préalablement. Nous avons effectué ces modification car le modèle d'origine de T. Detmire a beaucoup plus été utiliser pour l'étude des agrégats de gaz rare contrairement à notre cas qui traite les agrégats métalliques et plus exactement les agrégats de sodium.

En premier lieu nous avons commencé notre étude par une vaste recherche bibliographique concernent les différents termes liés à notre sujets de thèse ainsi nous avons pu revoir les divers résultats expérimentaux obtenu précédemment et les différentes théories établies dans ce domaine.

Plus particulièrement, nos résultats obtenus sur un agrégat de sodium ont permis de :

- Illustrer la variation du champ externe et interne en fonction du temps, et cela en utilisant un laser femtoseconde d'une intensité égale à I= 5.10^{17} W/cm^2 et d'une longueur d'onde égale à 800 nm pour une durée de t= 150fs
- Elaborer la variation de l'énergie totale des électrons en fonction du temps. On a trouvé que l'utilisation des agrégats métalliques permet d'obtenir des énergies très élevées (de l'ordre de 45 KeV) à comparer aux agrégats de gaz rare.
- Visualiser la variation de la densité électronique normalisée par la densité critique $\frac{n_e}{n_c}$ en fonction du temps d'où on a trouvé que la valeur maximale de $\frac{n_e}{n_c}$ est de l'ordre de 16,91 pour: $I = 5.10^{17}$W/cm², λ=800, N=5000 atomes et t=150 fs,
- Illustrer la variation des pressions hydrodynamique et colombienne en fonction du temps de l'agrégat du Na (5000 atomes) sous l'effet d'un laser femtoseconde intense d'intensité: $I = 5.10^{17}$W/cm², λ=800 nm et t=150 fs. Nous avons enregistré une valeur de P_c = 1,95. 10^{10} Bar à t = - 191, 16 fs de la pression colombien, cette valeur est très faible à comparer à celle enregistrée pour la pression hydrodynamique qui est

de l'ordre de $P_h = 1,55. 10^{11}$ Bar à t = - 191, 16 fs. Ces deux pressions s'annulent après l'explosion finale de l'agrégat. Donc, On conclu que la pression coulombienne est moins importante que la pression hydrodynamique, donc la pression hydrodynamique est responsable de la dynamique d'ionisation et d'explosion de l'agrégat.

- Observer l'effet de la variation de l'intensité du laser sur le champ interne et on a trouvé que l'utilisation d'une grande intensité accélère l'ionisation des atomes qui constituent l'agrégat et donne des valeurs très élevées des énergies des particules.
- Constater que l'utilisation de grandes longueurs d'onde permet d'obtenir des valeurs plus élevées de l'énergie totale (de l'ordre de 45KeV), du rapport de la densité électronique sur la densité critique ainsi que les valeurs des pressions hydrodynamique et colombienne. Pour les petites longueurs d'ondes l'explosion de l'agrégat s'effectue d'une façon très rapide.
- Déduire que le faite d'augmenter le nombre d'atomes à l'intérieur de l'agrégat, on obtient des valeurs plus élevées de l'énergie totale, du rapport de la densité électronique sur la densité critique ainsi que des deux valeurs plus grandes des pressions hydrodynamique et coulombienne.

Références bibliographiques

Références bibliographiques

[1] Rémi Maisonny, Thèse de doctorat, Université de Caen/ Basse-Normandie, (2011).

[2] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer, and C. K. Rhodes, *J. Opt. Soc. Am*. B, **4**:595, (1987).

[3] M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, M. D. Rosen, R. W, *Science*, **251**, 531-536, (1991).

[4] J.-C. Kieffer, C. Y. Chien, F. Dorchies, P. Forget, P. Gallant, Z. Jiang, H. Pépin, *C. R. Acad. Sci*. Paris, t. **1**, Series IV, 297-303, (2000).

[5] Servol Marina, Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique, (2005).

[6] E. Perra, I. Alexeev, J. Fan, K. Y. Kim, S. J. Mc. Naught et H. M. Milchberg, *Phys. Rev*. E **62**, R5931-R5934, (2000).

[7] C. Bréchignac, Ph. Cahuzac, J. Leygnier, A. Sarfati, *Phys. Rev. Lett*. **70**, 2036-2039, (1993).

[8] T. Ditmire, R. A. Smith, J. W. G. Tidch, M. H. R. Hutchinson, *Phys. Rev. Lett*. **78**, 3121, (1997).

[9] A. McPherson, T. S. Luk, B. D. Thompson, K. Boyer, C. K. Rhodes, *Appl. Phys*. B: *Lasers Opt*. **57**, 337-347 (1993).

[10] Y. L. Shao, T. Ditmire, J. W. G. Tisch, E. Springate, J. P. Marangos, and M. H. R. Hutchinson. *Phys. Rev. Letters*, **77**, 3343, (1996).

[11] T. Ditmire, J. Zweiback, V. P. Yanavsky, T. E. Cowan, G. hays, K. B. Wharton. *Nature* **398**, 489-491, (1999).

[12] Frédéric Dumas-Bouchait, Thèse de doctorat, Université de Limoge, France (2005).

[13] Gaspard Bousquet, Thèse de doctorat, Université de Toulouse III- Paul Sabatier, France (2008).

[14] G Mie, *Ann. Phys*. (Leipzig) *25*, 377, (1908).

[15] W. D. Knight, K. Clemenger, W. A. de Heer, W. A. Saunders, M. Y. Chou, M. L. Cohen, *Phys. Rev. Lett*. **52**, 2141, (1984).

[16] W. Ekardt, *Phys. Rev. Lett*. **52**, 1925, (1984).

[17] K. Clemenger, *Phys. Rev*. B **32**, 1359, (1985).

[18] W. D. Knight, K. Clemenger, W. A. de Heer, W. A. Saunders, Phys. Rev. B 31, 2539 (1985).

[19] W. A. Saunders, K. Clemenger, W. A. de Heer, D. Knight, *Phys. Rev*. B **32**, 1366, (1985).

[20] H. W. Kroto, *Nature*, **329**, 529, (1987).

[21] S. H. Yang, C. L. Petiette, J. Conceicao, O. Cheshnovsky, R. E. Smalley, Chem. *Phys. Lett*. **139**, 233, (1987).

[22] S. Lijima, *Nature* **354**, 56, (1991).

[23] P. M. Ajayan, S. Iijima, *Nature* **358**, 23,(1992).

[24] T. P. Martin, T. Bergmann, H. Göhlich, T. Lange, *Chem. Phys*. *Lett*. **172**, 209, (1990).

[25] T. P. Martin, T. Bergmann, H. Göhlich, T. Lange, *Z. f. Physic* D **19**, 25, (1991).

[26] T. P. Martin, S. Bjornholm, J. Borggreen, C. Béchignac, P. Cahuzac, K. Hansen, J. Pederson, *Chem. Phys. Lett*. **186**, 53, (1991).

[27] T. P. Martin, *Phys. Rep*. **273**, 199, (1993).

[28], T. P. Martin, P. Günter, Kluwer, Dordrecht, (1995).

[29] J. Pederson, S. Bjornholm, J. Borggreen, K. Hansen, T. P. Martin, H. D. Rasmussen, *Nature* **353**, 733, (1991).

[30] M. Brack, *Rev. Mod. Phys*. **65**, 677, (1993).

[31] R. Balian, C. Bloch, *Ann. Phys*. (NY) **85**, 514, (1974).

[32] J. Jellink (ed.), *Springer*, Berlin, (1999).

[33] P. G. Reinhard, E. Suraud, New York, (2003).

[34] C. Ellert, M. Schmidt, C. Schmitt, T. Reiners, H. Haberland, *Phys. Rev. Lett*. **75**, 1731 (1995).

[35] M. Schmidt, R. Kusche, B. Von Issendorff, H. Haberland, *Nature* **393**, 238, (1998).

[36] H. Haberland, T. Hippler, J. Donges, O. Kostko, M. Schmidt, B. Von Issendorff, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 035701, (2005).

[37] Fabien Chirot, Ph.D. thesis, Université Paul Sabatier, Toulouse, (2007).

[38] M. Cohen, A. G. G. M. Tielens, J. D. Bregman, *Astrophys. J. Lett*., L**13**, 344, (1989).

[39] Laurent Montagnon, Ph.D. thesis, Université Paul Sabatier, Toulouse, (2007).

[40] A. Sanchez, S. Abbet, U. Heiz, W. D. Schneider, H. Häkkinen, R. N. Barnett, U. Landman, *J. Phys Chem*. **103**, 9573, (1999).

[41] A. B. Kaiser, *Rep. Prog. Phys*. **64**, 1 (2001).

[42] Y. Murakami, E. Einarsson, T. Edamura, S. Maruyama, *Phys. Rev. Lett*. **94**, 087402, (2005).

[43] A. Jordan, R. Scholz, P. Wust, H. Schirra, T. Schiestel, H. Schmidt, R. Felix, J. Magn. *Mat*. **194**, p185-196 (1999).

[44] A. Jordan, R. Scholz, P. Wust, H. Fähling, R. Felix, J. Magn. *Mat*. **201**, 413-419, (1999).

[45] A. Jordan, R. Scholz, K. Maier-Hauff, M. Johannsen, P. Wust, J. Nadobny, H. Schirra, H. Schmidt, S. Deger, S. Loening, W. Lanksch, R. Felix, J. Magn. Magn. *Mat*. **225**, 118-126, (2001).

[46] A. Jordan, T. Rheinlander, N. Waldofner, R. Scholz, *J. Nanopart. Res*. **5**, 597-600, (2003).

[47] U. Gneveckow, A. Jordan, R. Scholz, V. Bruss, N. Waldofner, J. Ricke, A. Feussner, B. Hildebrandt, B. Rau, P. Wust, *Med. Phys*. 31, p1444-1451, (2004).

[48] L. Barraud, P. Merle, E. Soma, L. Lefrançois, S. Guerret, M. Chevallier, C. Dubernet, P. Couvreur, C. Trépo, L. Vitvitski, J Hepatol. 42(5), p736-743 (2005).

[49] A. Laurand, A. Laroche-Clary, A. Larrue, S. Huet, E. Soma, J. Bonnet, J. Robert, *Anticancer Res*. **24**(6), p3781-3788 (2004).

[50] N. Aouali, H. Morjani, E. Soma, D. Costantini, M. Manfait, Int J Oncol. **23**(4), p1195 1201 (2003).

[51] A. Dembri, M.J. Montisci, J.C. Gantier, H. Chacun, G. Ponchel, Pharm Res. **18**(4), p467 473, (2001).

[52] M. Dreja, J. Noglich, J. Josa, *Tenside Surfactants Deterg*. p180-186, (2004).

[53] M. Dreja, J. Noglich, J. Josa, Henkel, "The Surfactants and Detergents Division Newsletter" (2004).

[54] R. Rauline, Eur. Pat. 0 501227A1, to Cie. Générales d'Etablissements Michelin Cie, (brevet Michelin Rauline), (1992).

[55] H. L. Davis, J. Jellinek, R. S. Berry, *J. Chem. Phys*. **86**, 6456, (1987).

[56] R. S. Berry, *Nature* **393**, 212, (1998).

[57] U. Kreibig, M. Vollmer, *Springer Series in Materials Science*, Vol. **25,** Berlin, (1993).

[58] O. Cheshnovsky, K. J. Taylor, J. Conceicao, R. E. Smalley, *Phys. Rev. Lett*. **64**, 1785, (1990).

[59] W.A. De Heer, *Rev. Mod. Phys*. **65**, 611 (1993).

[60] G. Durand, J. Giraud-Girard, D. Maynau, F. Spiegelmann, F. Calvo, *J. Chem. Phys*. **110**, 7871, (1999).

[61] G. Durand, F. Spiegelmann, P. Poncharal, P. Labastie, J-M L'Hermite, M. Sence, *J. Chem. Phys*. **110**, 7884 (1999).

[62] G. Durand, F. Spiegelmann, *J. Euro. Phys*. D **13,** 237, (2001).

[63] F. Misaizu, M. Tsuruta, H. Tsunoyama, A. Furuya, K. Ohno, M. Lintuluoto, *J. Chem. Phys*. **123**, 161101 (2005).

[64] E. Blaisten-Barojas, D. Levesque, *NATO ASI Series B: Physics*, P. Jena, B. K. Rao, S. N. Khanna, p. 157, *Plenum Press*, New York, (1987).

[65] S. Sugano, Microcluster, *Physics Springer*, Berlin, (1998).

[66] J. Jellinek, T. L. Beck, R. S. Berry, *J. Chem. Phys*. **84**, 2783, (1986).

[67] W. Polak, A. Patrykiejew, *Phys. Rev*. B **67**, 115402, (2003).

[68] M. Brack, *Rev. Mod. Phys*. **65**, 677, (1993).

[69] W. A. De Heer, *Rev. Mod. Phys*. **65**, 611 (1993).

[70] Romuald Poteau, Ph.D. thesis, Université Paul Sabatier, Toulouse, (1993).

[71] H. Haberland, *Springer Series in Chemical Physics*, Vol. **52**, Berlin, (1994).

[72] T. G. Dietz, M.A. Duncan, D.E. Powers, R.E. Smalley, *J. Chem. Phys*. **74**(11), (1981).

[73] R. E. Smalley, *Laser Chem*. **2**, 167-184, (1983).

[74] R. E. Smalley, *Accounts of Chemical Research*, **25**, 98-105, (1992).

[75] W. Krätschmer et al, *Nature*, **347**, 354-358, (1990).

[76] W.B. Choi, D.S. Chung, J.H. Kang, H.Y. Kim, Y.W. Jin, I.T. Han, Y.H. Lee, J.E. Jung, N.S. Lee, G.S. Park, J.M. Kim, *Appl. Phys. Lett*. **75,** 20, (1999).

[77] P. Keghelian, Thèse de doctorat de 3ème cycle de l'Université de Lyon I, N°304-1998 (1998).

[78] C. Ray, Thèse de doctorat de 3ème cycle de l'Université de Lyon I, N°165-1999, (1999).

[79] P. G. Reinhard, E. Suraud, W. Ekardt, Metal Clusters, *Wiley*, New York, p. 211 (1999).

[80] P. F. Bortignon, R. A. Broglia, *Nucl. Phys*. A **371**, 405, (1981).

[81] P. G. Reinhard, C. Toepffer, H. L. Yadav, *Nucl. Phys*. A **458**, 301, (1986).

[82] E. M. Lifschitz, L. P. Pitajewski, Physikalische Kinetik, Vol. **X** *de Lehrbuch der Theoretischen Physik*, Mir, Moscow, (1988).

[83] I. Katakuse, T. Ichikara, Y. Fujita, T. Matsuo, T. Sakurai, H. Matsuda, *Int. J. Mass. Spectro*. **67**, 229, (1985).

[84] Y. Yamada, A.W. Castleman, J. Chem. Phys. 97 p4543, (1992).

[85] I. Katakuse, T. Ichikara, Y. Fujita, T. Matsuo, T. Sakurai, H. Matsuda, *Int. J. Mass. Spectro*. **74**, 33 (1986).

[86] W.D. Knight, K. Clemenger, W.A. De Heer, W.A. Saunders, M.Y. Chou, M.L. Cohen, *Phys. Rev. Lett*. **52**, 2141, (1984).

[87] W.D. Knight, W.A. de Heer, W.A. Saunders, *Z Phys*. D **3**, 9 (1986).

[88] I. Katsuke, T. Ichikara, Y. Fujita, T. Matsuo, T. Sakurai, H. Matsuda, *Int. J. Mass. Spectr*. **74**, 33 (1986).

[89] M. Pellarin, B. Baguenard, J. L. Vialle, J. Lermé, M. Broyer, J. Miller, A. Perez, *Chem. Phys. Lett*. **217**, 349-356, (1994).

[90] P. Joyes, *les éditions de physique*, (1990).

[91] P.A. Buffat, "Thin Solid Films," **32**, 283 (1976).

[92] Ph. Buffat, J.P. Borel, *Phys. Rev*. A **13**(6), (1976).

[93] R. Kusche, T. Hippler, M. Schmidt, B. von Issendor, H. Haberland, *Eur. Phys. J*. D **9**, p1- 4 (1999).

[94] H. Haberland, T. Hippler, J. Donges, Ol. Kostko, M. Schmidt, B. Von Issendorff, *Phys. Rev. Lett*. **94**, 35701, (2005).

[95] I. M. L. Billas, A. Châtelain, W.A. de Heer, *Science.* **265**, 1682, (1994).

[96] W. A. de Heer, P. Milani, A. Châtelain, *Phys. Rev. Lett*. **65**, 488, (1990).

[97] I. M. L. Billas, J. A. Becker, A. Châtelain, W. A. de Heer, *Phys. Rev. Lett*.**71**, 4067 (1991).

[98] J. P. Bucher, D. C. Douglass, L. A. Bloomfield, *Phys. Rev. Lett*. **66**, 3052, (1991).

[99] D. C. Douglass, J. P. Bucher, L. A. Bloomfield, *Phys. Rev. Lett*. **68**, 1774, (1992).

[100] D. C. Douglass, A. J. Cox, J. P. Bucher, L. A. Bloomfield, *Phys. Rev*. B **47**, 12874 (1993)

[101] A. J. Cox, J. G. Louderback, L. A. Bloomfield, *Phys. Rev. Lett*. **71**, 1079, (1993).

[102] A. J. Cox, J. G. Louderback, L. A. Bloomfield, *Phys. Rev*. B **49,** 12295, (1994).

[103] M. Faraday, *Philos. Trans. R. Soc*. (London) 147-145, (1857).

[104] A. Pinchuk, U. Kreibig, A. Hilger, *Surf. Sci*. **557**, 269-280, (2004).

[105] C. Noguez, *Opt. Mat*. **27**, 1204-1211, (2005).

[106] V.M. Shalaev, *Phys. Rep*. **272**, 137, (1996).

[107] G. Celep, E. Cottancin, J. Lermé, M. Pellarin, L. Arnaud, J. R. Huntzinger, J. L. Vialle, M. Broyer, B. Palpant, O. Boisron, P. Mélinon, *Phys. Rev*. B **70**, 165409 (2004).

[108] B. Prével, B. Palpant, J. Lermé, M. Pellarin, M. Treilleux, L. Treilleux, L. Saviot, E. Duval, A. Perez, M. Broyer, *Nanostruc Mat*. **12**, 307-310, (1999).

[109] B. Palpant, Thèse de 3ème cycle de l'Université de Lyon, N°214-1998, (1998).

[110] M. Maillard, Thèse de 3ème cycle de l'Université de Paris VI, N°XX, (2002).

[111] M. Roland GUICHARD, Thèse de doctorat, Université Bordeaux1, (2008).

[112] L. A. Jones and E. A. Kallne, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 30: 317, (1983).

[113] O. F. Hagena and W. Obert. *The Jornal of Chemical Physics*, **56**, 1793, (1972).

[114] T. Ditmire, M. H. R. Hutchinson, R. S. Marjoribanks, G. Kulcsa, R. A. Smith. *Appl. Phys. Letters*, **71**, 166, (1997).

[115] T. Ditmire, T. Donnelly, R. W. Falcone, M. D. Perry. *Phys. Rev. Letters*, **75**, 3122, (1995).

[116] T. D. Donnelly, T. Ditmire, K. Neuman, M. D. Perry, R. W. Flacone. *Phys. Rev. Letters*, **76**, 2472, (1996).

[117] T. Ditmire, T. Donnelly, A. M. Rubenchik, R. W. Flacone, M. D. Perry. *Phys. Rev*. A, **53**, 3379, (1996).

[118] S. Dobosz, M. Lezius, M. Schmidt, P. Meynadier, M. Perdrix, and D. Normand. *Phys. Rev*. A, **56**: R2526, (1997).

[119] J. P. Rozet, M. Cornille, S. Dobosz, J. Dubau, J. C. Gauthier, S. Jacqemot, E. Lamour, M. Lezius, D. Normand, M. Schmidt, and D. Vernhet. *PhysicaScripta*, T**92**:113-118, (2001).

[120] T. H. Maiman, *Nature*, Vol. **187**, 493-494, (1960).

[121] P. F. Moulton, *J. Opt. Soc. Am*. B Vol. **3** No.1, 125-132, (1986).

[122] D. Strickland, G. Mourou, *Opt. Com*. Vol. **56**, 219, (1985).

[123] P. Maine, D. Strickland, P. Bado, M. Pessot, and G. Mourou, *IEEE Journ. Of Quant. Elect*. **24**, 398, (1988).

[124] F. Plé, M. Pittman, G. Jamelot, J. P. Chambaret, *Optics Letters*. **32** No. 3, 238-241, (2007).

[125] Z. Cheng, F. Krausz and Ch. Spielman, *Optics Com*. **201**, 145-155, (2002).

[126] C. P. Hauri, M. Bruck, W. Kornelis, J. Biegert and U. Keller, *Optics letters*. **29** No.2, p 201-203, (2004).

[127] K. Yamakawa, M. Aoyama, S. Mastsuka, H. Takuma, J. P. C. Barty and D. Fittinnghoff, *Optics letters*, **23** No.7, 525-828, (1998).

[128] E. Zeek, R. Bartels, M. Murnane, H. C. Kapteyn, S. Backus and G. Vdovin, *Optics Letters*. **25** No. 8, 587-590, (2000).

[129] F. Verluise., V. Laude., Z. Chen., Ch. Spielmann and P. Tournois, *Optics Letters*. **68**, No.8, p 575-578 (2000).

[130] M. Nisolo, S. De Silvestri, O. Svelto, *Appl. Phys. Lett*. **68** No.20, 2793-2796, (1996).

[131] S. Sartania, Z. Cheng, M. Lenzner, G. Tempea, Ch. Spielmann, F. Krausz and K. Ferensz, *Optics Letters*, **22**, 1562-1564, (1997).

[132] M. Nisoli, S. Stagira, S. De Silvestri, O. Svelto, S. Sartania, Z. Cheng, G. Tempea, Ch. Spielmann and F. Krausz, *IEEE Journ. Of Quant*. Elect.**4** No. 2, 414-420, (1998).

[133] J. H. Sung, J. Y. Park, T. Imran, Y. S. Lee and C. H. Nam, *Appl. Phys*. B **82**, 5-8, (2006).

[134] C. P. Hauri, W. Kornelis, F. W. Helbing, A. Heinrich, A. Mysyrowicz, J. Biegert and U. Keller, *Appl. Phys*. B **79**, 673-677, (2004).

[135] G. Steinmeyer, G. Stibenz, *Appl. Phys*. B **82**, 175-181, (2006).

[136] C. P. Hauri, A. Trisorio, M. Merano, G. Rey, R. B. Lopez-Martens and G. Mourou, *Appl. Phys. Lett*. **89**, 151125, (2006).

[137] S. Adachi, H. Ishii, T. Kanai, N. Ishii, A. Kosuge and S. Watanabe, 1.5 mJ, 6.4 fs parametric chirped-pulse amplification system at 1 KHz," *Optics Letters*, **32** No 17, 2487-2490, (2007).

[138] A. Renault, D. Z. Kandula, S. Witte, A. L. Wolf, R. Th. Zinkstok, W. Hogervorst and K. S. E. Eikema, *Optics Letters*, **32**, No. 16, 2363-2366, (2007).

[139] Thomas Planchon, Thèse de Doctorat, L'école Polytechnique. (2003).

[140] Nicolas GALLICE. Thèse de Magistère, Université de Lyon1. (2003).

[141] Alexandre Trisorio., Thèse de doctorat, Université de Paris Sud, (2010).

[142] Vincent Floquet, Thèse de Doctorat, Université Paris-Sud, (2012).

[143] R. Ell., U. Morgner, F. X. Kartner, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen, V. Scheuer, G. Angelow, T. Tschudi, M. Lederer, A. Boiko and B. Luther-Davies, *Optics Letters*, **26** No. 6, 373-375, (2001).

[144] L. Xu., Ch. Spielmann, A. Poppe, T. Brabec, F. Krausz and T. W. Hänsch, Route to phase control of ultrashort light pulses, *Optics Letters.* **21**, No. 24, 2008-2010, (1996).

[145] A. A. Voevodin and M.S. Donley, *Surf. Coat. Technol*. **82**, 199-213, (1996).

[146] G. Dumitru, V. Romano, H.P. Weber, S. Pimenov, M. Sentis, W. Marine , Appl. Phys. A 74, 729-739 (2002).

[147] R. Le Harzic, D. Breitling, M. Weikert, S. Sommer, C. Föhl, S. Valette, C. Donnet, E. Audouard and F. Dausinger , *Appl. Surf. Sci*. **249**, 1- 4, 322-331, (2005).

[148] Mourad Bounhalli. Thèse de Doctorat, Université Jean Monnet de Saint-Etienne, (2012).

[149] G. Petite, Thèse de Doctorat, publication de l'Université de Saint-Etienne, 319, (2005).

[150] J. Hohlfeld, S. S. Wellershoff, J. Gudde, U. Conrad, V. Jahnke, E. Mattias, *Chem. Phys*. **251**. 237-258 (2000).

[151] W. S. Fann, R. Storz, H. W. K. Tom, J. Bokor, *Phys. Rev. Lett*. **68**, 2834 (1992).

[152] C. Suarez, W. E. Bron, T. Juhasz, *Phys. Rev. Lett*. **75**, 4536, (1995).

[153] M. Aeschlimann, M. Bauer, S. Pawlik, W. Weber, R. Burgermeister, D. Oberli, H.C. Siegmann, *Phys. Rev. Lett*. **79**, 5158 (1997).

[154] Glglio Eric, Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier Toulouse III, (2003).

[155] Neil. W Achkroft, N. David Mermin, *Solid State Physics*, Edition 1, (1976).

[156] E. M. Lifshitz and L. P. Pitaevskii, "Physical Kinetics," *Pergamon Press*, Oxford, (1981).
[157] M. Belkacem, M. A. Bouchene, P.-G. Reinhard and E. Suraud, *In Encyclopedia of Nanscience and Nanotechnology*, **8**, 575-591. H. S. Nalwa, (2004).

[158] U. Kreibig, M. Vollmer, *Springer Series in Material Science* **25**, (1995).

[159] W. Barnes, LA. Dereux, TW. Ebbesen, *Opt. Nat*. **424**, 824-830, (2003).

[160] HT. Miyazaki, Y. Kurokawa, *Phys. Rev. Lett*. 96, 09740 (2006).

[161] E. Ozbay, *Ekmel Ozbay in Science*. **311**, 189-193, (2006).

[162] A. Otto, *Z. Physik*, 216, 398-410, (1968).

[163] E. Kretschmann, H. Raether, Z. Naturforsch, *Z. Naturf*. **23**A, 2135, (1968).

[164] D. Andrick and L. Langhans, J. Phys. B: *At. Mol. Opt. Phys*, **9**: L459-L461, (1976).

[165] A. Weingartshofer, J.K. Holmes, G. Caudle, E. M. Clarke, and H. Krüger, *Phys, Rev. Lett*., **39**(5): 269-270, (1977).

[166] N. M. Kroll and K. M. Watson. *Phys. Rev*. A, 8(2): 804-809, (1773).

[167] G. J. Pert, *J. Phys*. A, **5**:506-516, (1972).

[168] L. Schlessinger and J. Wright, Phys. Rev. A, 20(5): 1934-1945, (1979).

[169] A. Brantov, W. Rozmus, R. Sydora, C. E. Capjack, V. Yu. Bychenkov, and V. T. Tikhonchuk, *Physics of Plasmas*, **10**(8): 3385-3396, (2003).

[170] Kruer W.L, Addison-Wesley, New-York (1988).

[171] Samuel Micheau, Thèse de doctorat, Université bordeaux I, (2007).

[172] E. E. E. Campbell, G. Ulmer et I.V. Hertel, *Phys. Rev. Lett*. **67**, 1986, (1991).

[173] V. Weisskopf, *Phys. Rev*. **52**, 295, (1937).

[174] K. Hansen, *Surface Science Reviews and Letters*, (1996).

[175] R. C. Issac, G. Vieux, B. Ersfeld, E. Brunetti, S. P. Jamision, J. Gallacher, D. Clark, et D. A. Jaroszynski, *Phys. Plasmas* **11**, 3491-3496, (2004).

[176] S. Ter-Avestisyan, M. Schnürer, H. Stiel, U. Vogt, W. Radloff, W. Karpov, W. Sandner et P. V. Nickles, *Phys. Rev*. E **64**, 036404, (2001).

[177] M. Mori, T. Shiraishi, E. Takahashi, H. Suzuki, L. B. Sharma, E. Miura et K. Kondo, *J. Appl*. **90**, 3595-3601, (2001).

[178] R. Shepherd, D. Price, W. White, S. Gordan. Al. Osterheld, R. Walling, W. Goldstien et R. Stewart, *J. Quant. Spectrrosc. Radiat. Transfer* **51**, 357-360, (1994).

[179] V. Kumarappan, M. Krishnamurthy et D. Mathur, *Phys. Rev*. A **67**, 0433204, (2003).

[180] E. Springate, S. A. Aseyev, S. Zamith, *Phys. Rev*. A **68**, 053201, (2003).

[181] T. Ditmire, J. W. G. Tisch, E. Springate, M. B. Mason, N. Hay, J. P. Marangos et M. H. R. Hutchinson, *Phys. Rev. Lett*. **78**, 2732-2735, (1997).

[182] M. Lezius, S. Dobosz, D. Normand et M. Schmidt, *Phys. Rev. Lett*. **80**, 261-264, (1998).

[183] M. Hirokane, S. Shimizu, M. Hashida, S. Okada, S. Okihara, F. Sato, T. Lida et S. Sakabe, *Phys. Rev*. A **69**, 063201, (2004).

[184] Tony Caillaud, Thèse de doctorat, Université de Bordeaux I, (2005).

[185] K. Boyer. Et C.K. Rhodes, J. Phys. B: At. *Mol. Opt. Phys*. **27**, L633–L636, (1994).

[186] C. Rose-Petruck, K. J. Schafer, K. R. Wilson, and C. P. J. *Phys. Rev*. A, **55**:1182, (1997).

[187] A. Mc Pherson, T. S. Luk, B.D. Thompson, A. B. Borisov, O. B. Shiryaev, *Phys. Rev. Letters*, **72**:1810, (1994).

[188] J. Purnell, E. M. Snyder, S. Wei, and A. W. Jr. Castleman. *Chemical phys. Letters*, 229:333, (1994).

[189] E. Springate, N. Hay, J. W. G. Tisch, M. B. Mason, T. Ditmire, M. H. R. Hutchinson et J. P. Marangos, *Phys. Rev*. A **61**, 063201, (2000).

[190] H. M. Milchberg, S. J. McNaught et E. Parra, *Phys. Rev*. E **64**, 056402, (2001).

[191] I. Last, I. Schek, and J. Jortner. *J. of Chem. Phys*, **107**, 6685, (1997).

[192] I. Last, and J. Jortner. *Phys*. A, **58**, 3826, (1998).

[193] I. Last, J. Jortner, *Phys. Rev*. A, **62**, 013201, (2000).

[194] I. Last, J. Jortner, *J. Chem. Phys*, **120,** 1336 (2004).

[195] V. P. Krainov, and A. S. Roshchupkin, *J. Phys*. B, **34**, L297, (2001).

[196] S. Sakabe, S. Shimizu, M. Hashida, F. Sato, T. Tsuyukushi, K. Nishihara, S. Okihara, T. Kagawa., Y. Izawa., K. Imasaki., and T. Iida, *Phys. Rev*. A, **69**, 23203, (2004).

[197] J. S. Zweiback, T. E. Cowan, J. H. Hartley, R. Howell, K. B. Wharton, J. K. Crane, V. P. Yanovsky, G. Hays, R. A. Smith, and T. Ditmire, *Phys Of Plasmas*, **9**, 3108, (2002).

[198] K. J. Mendham, PhD Thesis, Imperial College of Science, Technology and Medcine, Thesis submitted in partial fulfillment of the requirements for the degree of Doctor of Philosophy of the University of London, (2002).

[199] T. Ditmire, *Phys. Rev*. A, **57**: R4094, (1998).

[200] M. Brewczyk, C. W. Clark, M. Lewenstein, and K. R. Rzazewski. *Phys. Rev. Letters*, **80**, 1857, (1998).

[201] M. Rusek., H. Lagadec, and T. Blenski, *Phys. Rev*. A, **63**, 013203, (2000).

[202] G. M. Petrov, J. Davis, A. L. Velikovich, P. Kepple, A. Dasgupta et W. R. Clark. *Phys. Plasmas*, **12**, 063103, (2005).

[203] NRL Plasma Formulary, Naval Research Laboratory, Washington, DC 20375, (2004).

[204] L. Landau et E. Lifchitz, (1969).

[205] S. I. Braginskii, m.a. leontivich consultants bureau, *Reviews of plasma physics*, ed. **1**, New York, 213, (1965).

[206] V. P. Silin, *J. Exp. Theor. Phys*. **20**, 1510, (1965).

[207] T. W. Johnston and J. M. Dawson, *Phys. Fluids* **16**, 722, (1973).

[208] P. Musler, F. Cornolti, E. Bésuelle, R. Schnieder, *Phys. Rev*. E **63**, (2000).

[209] N. David, D. J. Spence, S. M. Hooker, *Phys. Rev*. E **70**, 056411, (2004).

[210] F. Megi, M. Belkacem, M. A. Bouchene, E. Suraud, G. Zwicknagel, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys*. **36**, 273-282, (2003).

[211] C. Yannouleas, *Nucl. Phys*. A **439**, 336, (1985).

[212] C. Yannouleas, R. A. Broglia, *Ann. Phys*. NY **217**, 105, (1992).

[213] W. Lotz, *Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei*. **216**, 241-247 (1968).

[214] M. Abramowitz, I. A. Stegun (ed), *National Bureau of Standards*, (1964).

[215] F. Megi, Thése de doctorat, Université Paul Sabatier- Toulouse III, (2005).

[216] A. F. Haught., D. H. Polk, *Phys. Fluids*. **13**, 2825, (1970).

[217] W. H. Press, S. A. Tenkolsky, W. T. Vetterling and B. P. Flannery, *Cambridge University Press*, (1986-1992).

[218] M. V. Ammosov, N. B. Delone. V. P. Krainov, *J. Exp. Theor. Phys*. **64**, 1191, (1986).

[219] S. Banerjee., G. Ravindra Kumar., D. Mathur. *Phys. Rev*. A **60**, R25-R28, (1999).

دراســة الظــواهر التي تؤدي إلى انفجــار المجاميــع الخاضعــة لحـقول ليزريّـة فامتوثانية عاليــة الشدة

من طرف: **بريشنـــي عبـدالرزاق**

ملخص

إن استخدام نبضات الليزر المكثفة والفائقة القصر (بضلع مئات من الفامتوثانية) على بضعة نانو متر من أهداف معدنية ($10^{14}W/cm^2<$) يسمح لنا بتشكيل بلازما مكثفة وساخنة , وقد أدت دراسة مجموعات الصوديوم المعدنية (Na) التي تحتوي على 5.10^3 ذرة في المجموعة الخاضعة لحقول ليزريّة فامتوثانية ومكثفة للحصول على طاقة إثارة قوية يمكن أن تكون مصدر للإلكترونات ذات طاقة عالية , وأيونات طاقوية ذات شحنات عالية التي تؤدي الى عمليات الانشطار النووي .

في هذا العمل , وذلك باستخدام نسخة معدلة من نموذج نانوبلازما المقترح أصلاً من قبل T. Ditmire و آخرون, هذا النموذج الفينومينولوجي وحيد البعد يسمح لنا بوصف الديناميكية التي تؤدي إلى انفجار المجاميع الكبيرة ومن خلاله استطعنا القيام بدراسة تغيرات مختلف العوامل المتغيرة لهذا النموذج اعتمادا على عدد الذرات والطول الموجي وشدّة الليزر المستخدم.

وقد وجدنا أن بعد انفجار المجاميع انبعاث الإلكترونات ذات طاقة عالية تصل قيمتها إلى ما يقارب 45 كيلو إلكترو فولط, وكذلك وجدنا أن الضغط الكولومبي أقل قيمة من الضغط الهيدروديناميكي ,لذلك يمكننا القول أن الضغط الهيدروديناميكي هو المسؤول عن ديناميكية تمدد و انفجار المجاميع .

الكلمات المفتاحية: ليزر فمتو ثانية ذات عالية الشدة - مجاميع المعدن – نانو بلازما- نانومواد.

****

Étude des phénomènes conduisant à l'explosion des agrégats soumis à des champs laser femtosecondes intenses.

Par : **BRICHNI Abderrazek**

Résumé

L'utilisation des impulsions lasers intenses et ultracourtes (quelque centaine de femtoseconde) focalisées sur quelques nanomètres d'une cible métallique ($> 10^{14}W/cm^2$) nous permet de former un plasma chaud et dense. L'étude des clusters métalliques de Sodium (Na), contenant 5.10^3 atomes par agrégat, soumis à des champs laser femtosecondes intenses a conduit à une forte énergie d'excitation qui peut être l'origine des électrons de fortes énergies, des ions énergétiques de hautes charges ou des processus de fragmentation. Dans ce travail, et en utilisant une version modifiée du modèle nanoplasma initialement proposé par T. Ditmire et al, ce modèle phénoménologique unidimensionnel permet de décrire la dynamique conduisant à l'explosion de gros agrégats, on a étudié en détail la variation des différents paramètres du nanoplasma en fonction de la longueur d'onde, du nombre d'atomes ainsi que de l'intensité du laser femtoseconde utilisée. On a trouvé qu'après l'explosion de l'agrégat, l'énergie des électrons émis atteint une valeur de l'ordre de 45 KeV. On a trouvé que la pression coulombienne est moins importante que la pression hydrodynamique, donc on peut dire que la pression hydrodynamique est responsable de la dynamique d'expansion et d'explosion de l'agrégat.

Mots clés: Nanomatériaux - Clusters métalliques - Laser femtoseconde intense – Nanoplasma.

****

Study of phenomena leading to the explosion of clusters submitted to intense femtosecond laser fields

By : **BRICHNI Abderrazek**

Abstract

The use of intense ultrashort laser pulses (few hundred femtosecond) focused on a few nanometers of a metal cluster ($> 10^{14}W/cm^2$) allows us to form a hot and dense plasma. The study of metal clusters Sodium (Na), containing 5.10^3 atoms per cluster and subjected to intense femtosecond laser fields has lead to a high excitation energy that can be the origin of highly energy electrons, energetic ions and fragmentation process. In this work and using a modified version of the nanoplasma model originally proposed by T. Ditmire et al., This phenomenological model one-dimensional describe the dynamics leading to the explosion of large cluster. We have studied in detail the variation of different nanoplasma's parameter depending on the wavelength, the number of atoms and the intensity of used femtosecond laser. We have found that after the explosion of the cluster, the energy of the emitted electrons attains a value of the order of 45 keV. We have also found that the Coulomb pressure is less than the hydrodynamic pressure, so we can say that the hydrodynamic pressure is responsible of the dynamics of expansion and explosion of the cluster.

Keys words: Nanomaterials - Metal Clusters - intense femtosecond laser - Nanoplasma.