

E-4 IMAGERIE PAR DIFFUSION RAYLEIGH DE JETS D'AGREGATS

C. Stenz*, S. Cussat-Blanc**, G. Grillon***, B. Kraabel***

* CELIA, Université Bordeaux 1, 33405 Talence, France

** CPMOH, Université Bordeaux 1, 33405, Talence, France

*** LOA, ENSTA/Ecole Polytechnique CNRS, 91120 Palaiseau

Abstract - Rayleigh scattering is used for the imaging of supersonic clusters flows. Clusters mean size and spatial distribution is obtained.

1 - Introduction

Les agrégats de van de Waals présentent un intérêt croissant pour la production de sources de rayonnement X, pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé ou encore pour l'étude de l'interaction laser matière en phase condensée microscopique.

La force de cohésion, d'un agrégat homogène d'atomes ou de molécules, est liée à la polarisabilité α des atomes ou des molécules le constituant. Bien que l'énergie de liaison soit extrêmement faible, comparée aux autres formes de liaison ou à l'énergie thermique, la taille moyenne N des agrégats (nombre d'atomes ou de molécules dans un agrégat) peut varier de 2 à quelques dizaines de milliers et leur dimension d'une fraction de nm à quelques dizaines de nm.

Les agrégats de van der Waals, ainsi produits au cours de la détente sonique ou supersonique d'un gaz sous vide, ont fait l'objet de nombreuses études expérimentales¹. Le paramètre d'Hagena Γ^* , permet de définir une limite inférieure pour l'obtention d'agrégats. Elle est liée à la géométrie de la buse, à la nature du gaz utilisé, à travers le facteur empirique de condensation k ainsi qu'à la pression P_0 et à la température initiale T_0 du gaz. Ce paramètre est proportionnel au facteur de condensation k et à la pression P_0 . Les expériences réalisées par Hagena ont permis de montrer qu'il y a condensation pour $\Gamma^* > 300$.

La structure des agrégats d'argon a été étudiée de façon détaillée par le groupe de G. Torchet à Orsay. Fargés et al² ont montré que dans le domaine des tailles moyennes $50 < N < 750$ on passe d'une structure d'icosaèdre multicouches à une structure cubique à face centrée. La transition entre agrégat et cristal se situe aux alentours de $N > 750$.

Nous présentons ici une étude, permettant de déterminer, la structure de jets d'agrégats au moyen de l'imagerie par diffusion Rayleigh réalisée au moyen d'un *laser He-Ne continu*. Cette étude est, à notre connaissance, la première de ce type. Nous en présentons ici le principe, l'analyse détaillée et l'interprétation des résultats obtenus avec différents gaz (Ar, Kr, Xe, CO₂) est présentée par ailleurs³.

2 - Diffusion de la lumière par des agrégats

Un agrégat d'argon ayant une taille moyenne N comprise entre 10^3 et 10^4 atomes se comporte comme une « sphère diffusante » de rayon R compris entre 2 et 4.3 nm, bien inférieur à la longueur d'onde laser λ . On est dans ce cas dans le régime de diffusion Rayleigh (diffusion de Mie lorsque $\lambda \ll R$). La section efficace de diffusion Rayleigh par un atome σ_{at} est proportionnelle au carré de sa polarisabilité (α^2). Si l'on admet que la polarisabilité d'un agrégat atomique homogène est égale à la somme des polarisabilités des atomes le constituant, la section

efficace de diffusion d'un agrégat de taille N , σ_{ag} est proportionnelle à la $(N\alpha)^2$,⁴ la section efficace de diffusion par un agrégat est par suite $\sigma_{ag} = N^2 \sigma_{at}$. L'intensité de la lumière diffusée par unité de volume est proportionnelle à la section efficace de diffusion par un agrégat multiplié par la densité d'agrégats. Si l'on admet que la densité moyenne d'agrégats est égale à la densité de gaz divisée par la taille moyenne N des agrégats, il en résulte que: *l'intensité diffusée par unité de volume par un gaz d'agrégats est proportionnelle à la taille moyenne N des agrégats*.

3 - Dispositif expérimental

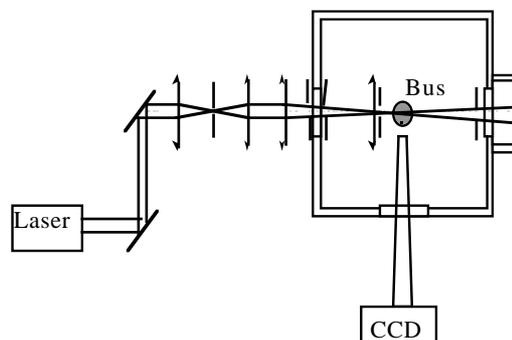


Figure 1: schéma de l'expérience

On utilise un laser He-Ne continu de 10 mW. La lumière diffusée est détectée au moyen d'une caméra CCD intensifiée et refroidie.

4 - Résultats expérimentaux

a- Calibration Rayleigh dans un gaz statique

La fig 2 représente les images du volume diffusant obtenues dans de l'argon statique pour des pressions de gaz de 100 mbar et de 900 mbar. Le faisceau laser sonde à un profil Gaussien d'une largeur à mi-hauteur de 80 μm .

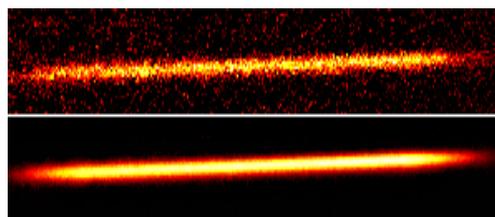


Figure 2: imagerie Rayleigh pour deux pressions de gaz (haut: 100 mbars; bas 950 mbar)

Nous avons procédé dans un premier temps à la mesure de l'intensité diffusée dans un gaz statique (argon et azote) à différentes pressions (fig 2). Le temps d'acquisition de la lumière diffusée ainsi que du bruit de fond est de 60 s. Le bruit de fond est ensuite retranché au signal diffusé. L'écart entre les valeurs théorique et expérimentale

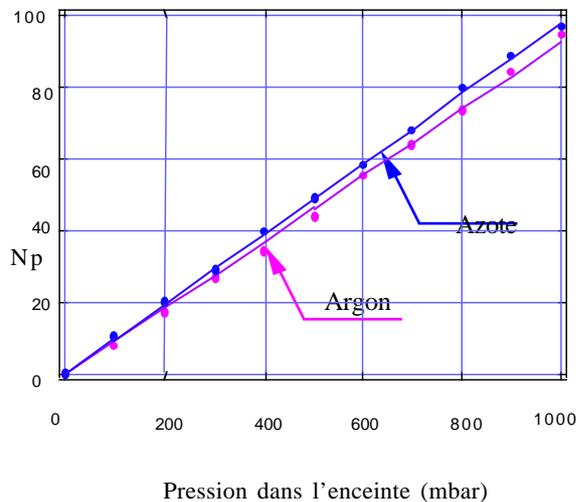


Figure 3: calibration Rayleigh

(déduite de la pente des droites) du rapport des sections efficaces de diffusion dans l'azote et dans l'argon est de 5%. Cette calibration permet de déterminer le nombre de photons diffusés N_p reçus par la CCD par seconde et par pixel en fonction de la pression gazeuse P_0 ou de la densité de gaz n_0 dans les conditions normales de température ($T_0=298\text{ K}$).

b- Diffusion Rayleigh dans un jet.

la fig 4 représente la distribution de l'intensité reçue par pixel par sec pour un jet d'argon (a) et pour un jet d'azote (b) à une distance de $1.24 \pm 0.1\text{ mm}$ de la sortie de la buse 1. La pression amont dans la tuyère est de 80 bars.

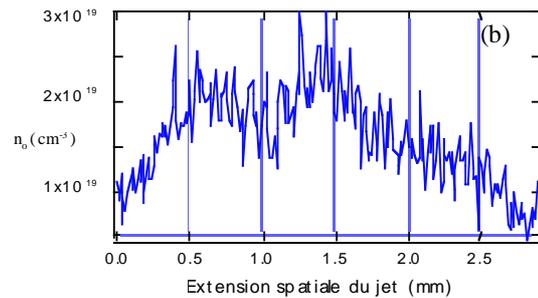
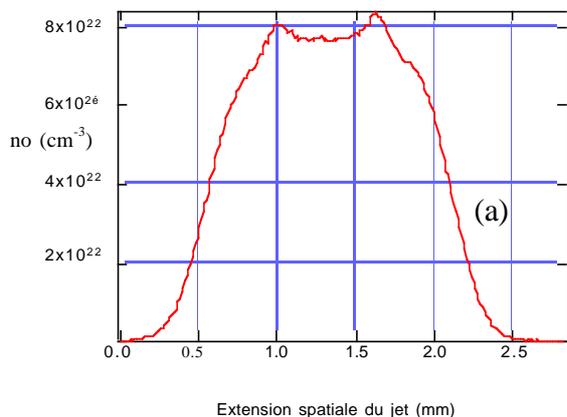


Figure 4: Profils de densité équivalente n_0 pour l'argon (a) et pour l'azote (b) (buse 1)

Le temps d'acquisition pour l'argon est de 10 ms, celui pour l'azote de 2 s. Chaque point du profil obtenu représente un pixel de la matrice CCD. L'échelle en ordonnée est rapportée à la densité atomique équivalente que l'on obtiendrait dans le gaz statique (calibration). La fig 5 représente la variation de l'intensité diffusée en fonction de la pression P_0 en amont de la tuyère. On obtient une loi en $P_0^{3.45}$

5- Discussion des résultats

Les pics symétriques observés sur le profil obtenu avec l'argon correspondent à la discontinuité de densité associée à une onde de choc. Ceci nous a permis, en éloignant progressivement la sortie de buse du faisceau sonde, de déterminer le nombre de Mach pour la buse considérée ici ($M=2.5$). La dissymétrie observée dans le profil obtenu avec la buse 2, représenté sur la fig 6, permet ainsi de caractériser la symétrie géométrique ou les défauts d'usinage des buses réalisées.

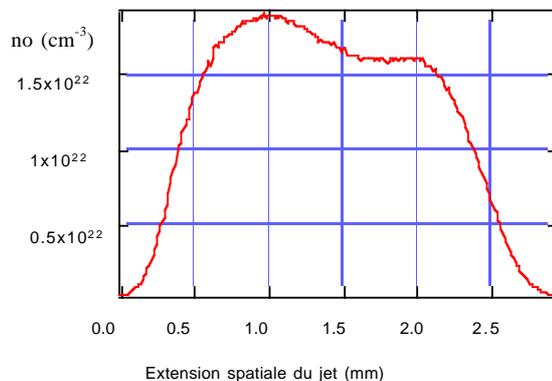


Figure 6: Profil du jet obtenu dans le cas d'une buse dissymétrique (buse 2).

La détermination des profils de densité dans les jets réalisés par interférométrie Mach-Zehnder (rapport LULI 1996) conduit à une densité sur l'axe du jet d'argon de $(1.75 \pm 0.05) \times 10^{19}\text{ atomes.cm}^{-3}$, on peut donc en déduire une taille moyenne des agrégats d'argon de $4280 < N < 4410$ à une pression P_0 de 80 bars dans la buse 1. Dans le cas de l'azote cette taille peut être estimée dans les mêmes conditions égale à 1 ou 2 (monomère ou dimère).

6 - Conclusion

La diffusion Rayleigh associée à l'interférométrie est une méthode particulièrement intéressante pour la caractérisation avec une bonne précision de la distribution spatiale de la densité et de la taille des agrégats dans les jets supersoniques à haute densité. Cette méthode permettra l'étude des jets produits par les différents types de buses (géométrie cylindrique, géométrie plane) en cours de développement. La caractérisation des agrégats de van de Waals présentent, par ailleurs, un intérêt essentiel pour les études menées actuellement sur l'interaction laser matière en phase condensée microscopique en vue de la production de sources de rayonnement X ainsi que de la génération d'harmoniques d'ordre élevé.

Remerciements

Nous remercions l'atelier de mécanique du LOA pour l'aide apportée dans la réalisation de cette expérience, ainsi que M. Claude Rouillé du LPMI pour le prêt d'une jauge de pression haute précision.

Références

- ¹O. Hagena et W. Obert, J. Chem. Phys. **56**, 1793 (1972)
- ²J. Farges et al J. Chem. Phys. **84**, 3491 (1986)
- ³C. Stenz et al soumis à Appl. Phys. Lett.
- ⁴A. Bell et al, J. Phys. D **26**, 994 (1993)