

MINISTRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE
UNIVERSITE MOULOUD MAMMERI, TIZI-OUZOU

FACULTE DES SCIENCES
DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

THESE DE DOCTORAT

SPECIALITE : Physique
OPTION : Physique des Matériaux

Présentée par
Mr. Madjid DJOUDER

Sujet :

**MODELISATION DE LA FORMATION DES NANOSTRUCTURES
OBTENUES PAR ABLATION LASER EN REGIME FEMTOSECONDE**

Devant le jury d'examen composé de :

Mr. Mouloud BENNAKI	Professeur	UMMTO	Président
Mr. Omar LAMROUS	Professeur	UMMTO	Rapporteur
Mr. El-Hachemi AMARA	Directeur de Recherche	CDTA	Examineur
Mr. Mohamed KHELKHAL	Maître de Conférence	USTL de Lille, France	Examineur
Mr. Omar ZIANE	Professeur	USTHB	Examineur

Soutenue le 11 Novembre 2012

Remerciements

Je suis très reconnaissant à Monsieur Omar LAMROUS, Professeur à l'UMMTO, pour la confiance qu'il m'a accordée en m'accueillant dans son équipe au sein du Laboratoire de Physique et de Chimie Quantique (LPCQ). Son soutien et sa disponibilité m'ont beaucoup aidé pour mener à bien ce présent travail. Qu'il veuille bien croire à l'expression de ma haute considération.

Je remercie Monsieur M. BENNAKI, Professeur à l'UMMTO, de m'avoir fait l'honneur de présider le jury de soutenance.

Mes remerciements vont également aux messieurs E.H. AMARA, Directeur de Recherche au CDTA, M. KHELKHAL, Maître de Conférence à l'Université Lille 1 et à M. O. ZIANE, Professeur à L'USTHB, d'avoir accepté d'examiner ce travail de thèse. Qu'ils veuillent bien trouver ici l'expression de ma profonde gratitude.

Je tiens à remercier vivement Madame Tatiana ITINA, Directeur de Recherche au CNRS (Laboratoire Hubert Curien, St Etienne, France), pour son aide tout au long du travail, notamment la documentation qu'elle a eu l'amabilité de me fournir.

Je ne saurais remercier assez mes parents, mes frères et ma sœur pour leur disponibilité ainsi que ma femme qui a beaucoup contribué au bon déroulement de mon travail.

Un grand merci amical aux membres de l'équipe du LPCQ qui ont su installer un climat des plus favorables au travail de recherche.

Table des matières

Introduction	4
1 Laser femtoseconde. Nanostructures	8
1.1 Introduction	8
1.2 Génération des pulses ultracourts	9
1.3 Blocage de Mode	10
1.3.1 Blocage de Mode par un absorbant saturable	11
1.3.2 Blocage de Mode par composant Non-Linéaire (SFG ou effet Kerr)	12
1.4 Dispersion	13
1.5 Amplification	14
1.6 Applications du Laser femtoseconde	14
1.7 Nanostructuration de la surface ablatée	15
1.7.1 Les stries (<i>ripples</i>)	17
1.7.2 Les autres structures	23
1.7.3 Intérêts pratiques dans le photovoltaïque et la détection	24
2 Processus d'interaction rayonnement-matière	28
2.1 Introduction	28
2.2 Mécanismes d'absorption d'un rayonnement électromagnétique	29
2.2.1 Bremsstrahlung inverse	29
2.2.2 Absorption intra-bande et ionisation	30
2.2.3 Diffusion	32
2.3 La relaxation de l'énergie	35
2.3.1 Relaxation électrons-électrons	36

2.3.2	Relaxation électron-phonon dans les métaux	36
2.3.3	Temps de relaxation (ou fréquence de collision)	37
2.4	Propriétés optiques d'un solide	39
2.5	Modèle de Drude-Lorentz	41
2.6	Mécanismes de formation des stries	45
2.6.1	Mécanisme d'interférence	45
2.6.2	Mécanisme coulombien et de diffusion paramétrique	47
3	Modèles de simulation de l'interaction Laser-matière	51
3.1	Introduction	51
3.2	Modèle à deux températures	53
3.3	Modèle hydrodynamique	56
3.3.1	Equation d'état de la matière chaude et dense	58
3.3.2	Modèle de conductivité électronique dans les plasmas chauds et denses	59
3.3.3	Résultats et discussions sur la chronologie de l'ablation femtose- conde	60
3.4	Methode particulaire PIC	62
4	Mécanisme de formation des stries	69
4.1	Introduction	69
4.2	Modèle adopté	70
4.2.1	Discrétisation de l'équation du mouvement	73
4.2.2	Stabilité de l'algorithme <i>Leap-frog</i>	75
4.2.3	Conditions aux bords	76
4.2.4	Algorithme de la méthode PIC	77
4.3	Simulation d'un modèle électrostatique	79
4.3.1	Résolution de l'équation de Poisson : méthode spectrale	80
4.3.2	Resultats de la simulation électrostatique	82
4.4	Simulation d'un modèle électromagnétique	86
4.4.1	Méthode FDTD	86
4.4.2	Resultats de la simulation électromagnétique	91

5 Conclusion	104
Conclusion	104
Bibliographie	107

Introduction

Lors d'un éclairage intense d'une cible solide, notamment par un laser, l'énergie électromagnétique transmise à la matière est convertie en chaleur, laquelle engendre des changements d'état et des transformations thermodynamiques dans le matériau irradié. De ce fait, toutes les applications des lasers de puissance au traitement des matériaux mettent en jeu des mécanismes physico-chimiques qui régissent l'interaction laser-matière et la façon dont l'énergie apportée est absorbée. Très tôt, Birnbaum observa en 1965, sur certains semiconducteurs irradiés par un laser à rubis, l'apparition de structures périodiques en forme de stries parallèles (*ripples*). La figure (0-1) présente la première image de ces structures obtenue par microscopie électronique. Par la suite, d'autres travaux ont montré des propriétés remarquables de ces nanostructures : elles apparaissent sur tout type de matériaux (métallique, semi-conducteur et diélectrique) ; elles sont généralement perpendiculaires à la direction de polarisation du laser ; la distance entre deux stries consécutives est de l'ordre de la longueur d'onde du laser ; elles apparaissent à toutes les durées d'impulsions (de la nanoseconde à la femtoseconde) et à des fluences proches du seuil d'ablation.

L'apparition récente des lasers à impulsions ultracourtes (lasers femtosecondes) et leur utilisation dans ce contexte a fait apparaître un certain nombre de caractéristiques particulières telle que la coexistence de deux types de stries : les unes de période proche de la longueur d'onde λ du laser et les autres de période plus petite pouvant atteindre $\lambda/6$.

D'autres structures sont par la suite observées en faisant varier la fluence, la polarisation, le nombre de pulses ou encore le gaz environnant. A ces structures, on a donné le nom de structures de surface induites par laser (LIPSS : *Laser Induced Periodic Surface Structures*). Ces structures peuvent se présenter sous différentes morphologies,

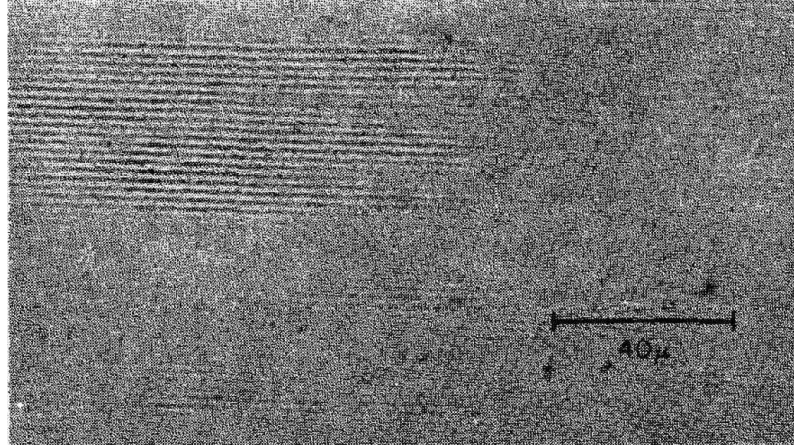


FIG. 0-1 – Première image des stries due à Birnbaum en 1965 [5]. Le faisceau issu d'un laser à rubis a une intensité de 10^4 W/cm^2 irradie une cible de Germanium.

perles et cônes à têtes arrondies ou pointues bien que la structure d'origine reste la forme en stries.

De nombreux travaux de recherche actuellement consacrés aux surfaces nanostructurées en matière de compréhension des mécanismes de structuration, d'élaboration de surfaces structurées et de détermination de leurs fonctionnalités potentielles dans les diverses applications industrielles. L'augmentation de la mouillabilité et la catalyse chimique en sont des exemples. Aussi, l'augmentation spectaculaire du coefficient d'absorption de ces surfaces, de manière uniforme et sur un très large spectre électromagnétique, fait que cette technique de structuration par laser est largement destinée à la fabrication de cellules photovoltaïques à très grand rendement et à la conception de détecteurs à très large bande.

Du point de vue théorique, l'étude des stries dont les propriétés sont signalées plus haut, suggère un mécanisme de formation d'un niveau fondamental, au delà des différences entre métaux, semi-conducteurs et diélectriques. Dans la littérature, on trouve plusieurs propositions de mécanismes. C'est Birnbaum qui, le premier, proposa un mécanisme lié à la diffraction par les lentilles de focalisation. Toutefois le mécanisme communément admis est le mécanisme d'interférence optique. Ce dernier est suggéré pour la première fois par Emmony et *al* en 1973 et ensuite formalisé par Sipe et *al* en 1982. Récemment, il a été amélioré en considérant les processus nonlinéaires tel que

la génération de seconde harmonique pour expliquer la formation de stries de petites périodes. Ainsi, l'onde électromagnétique diffusée parallèlement à la surface, par les rugosités, interfère avec l'onde incidente pour former une figure d'interférence dont les franges sont perpendiculaires à la direction de polarisation. Les régions à grande intensité, contrairement aux régions à intensité faible, subissent une ablation plus prononcée. Enfin, certains auteurs proposent un autre mécanisme basé sur l'explosion coulombienne¹ ; les ondes dans le plasma de surface produit par le laser induisent des régions où la densité d'électrons est faible, sous l'action de la répulsion coulombienne, le réseau d'ions explose. La période spatiale des stries résultantes n'est autre que la longueur d'onde de ces plasmons de surface. La compréhension des mécanismes à l'origine de cette auto-organisation de matière permettrait, outre l'intérêt purement théorique, de contrôler et d'optimiser la morphologie de ces structures.

Ce présent travail de thèse s'inscrit dans cette problématique et s'articule autour des mécanismes de formation de stries. En effet, les mécanismes d'interférence et de diffusion paramétrique, sans les rejeter, présentent à notre avis un inconvénient non négligeable puisqu'ils considèrent les propriétés du solide constantes durant l'impulsion. Dans ce contexte nous montrons que la densité électronique est fortement inhomogène et par conséquent les propriétés optiques qui dépendent de celle-ci, le sont d'autant.

Dans notre cas, afin d'étudier l'interaction d'une impulsion laser avec un métal, nous avons exploité le fait qu'à l'échelle femtoseconde, l'inertie des ions est grande par rapport à celle des électrons. Par conséquent, on peut admettre que les ions restent pratiquement immobiles durant l'impulsion. Nous avons alors modélisé le métal comme un ensemble d'électrons libres dans un réseau d'ions immobiles. En rapport à ces considérations, nous avons choisi pour modéliser notre système, la méthode «Particle in Cell» (PIC), largement utilisée en physique des plasmas.

Depuis son invention en 1960, le laser est utilisé dans un grand nombre de domaines. Récemment, la venue des lasers de durée d'impulsions ultracourte (subpicoseconde) a encore élargi le domaine des applications (micro-usinage, études de la dynamique des réactions chimiques,...etc). La première partie du chapitre 1 est donc consacrée à un

¹Le terme explosion coulombienne est souvent utilisé dans le contexte de la physique moléculaire pour désigner le mécanisme par lequel une molécule à laquelle on a enlevé des électrons assurant la liaison va exploser sous l'influence de la répulsion coulombienne entre les ions qui la composent.

bref aperçu de la technique de production des impulsions femtosecondes. La seconde partie est dédiée à la description des différentes structures issues de l'ablation par laser femtoseconde, notamment les stries, et leurs utilisations dans les domaines de la photovoltaïque et de la détection.

Lorsque la matière est irradiée par un rayonnement électromagnétique, ce sont les électrons qui absorbent, en grande partie, l'énergie déposée par un processus de *Bremsstrahlung* inverse, pour ensuite la redistribuer au réseau par plusieurs processus, dont l'émission de phonons et les collisions entre électrons sont dominants. Le deuxième chapitre, exposera par conséquent quelques processus d'interaction laser-matière, notamment les phénomènes de relaxation.

L'ablation femtoseconde est fondamentalement différente de l'ablation nanoseconde. Ceci est dû au fait que la durée de l'interaction (la durée de l'impulsion) est bien plus courte que le temps nécessaire à l'établissement de l'équilibre thermique, qui est de l'ordre de quelques picosecondes. Dans le chapitre 3, nous présentons les modélisations utilisées initialement dans les domaines nano et picoseconde puis adaptées au domaine femtoseconde : le modèle simplifié à deux températures pour étudier la diffusion thermique à l'intérieur du solide à des faibles fluences et le modèle lagrangien hydrodynamique à une dimension, pour des fluences plus élevées qui provoquent le mouvement de la matière. Dans ce même chapitre, nous introduisons la modélisation particulière PIC qui découle de l'équation cinétique de Vlasov et qui a l'avantage, contrairement aux deux premières, d'être toujours valable pour des systèmes hors-équilibre thermodynamique, tel que celui que nous étudions.

Dans le quatrième et dernier chapitre, nous exposons le modèle de l'interaction laser-métal basé sur la méthode PIC. Les résultats issus des simulations correspondent à deux situations physiques. La première est basée sur une approximation électrostatique de séparation de charge, la deuxième est un modèle amélioré dans le sens qu'il prend en considération le caractère électromagnétique du mouvement des charges. Les résultats obtenus sont discutés et confrontés aux prévisions des autres modèles et des résultats expérimentaux que l'on peut trouver dans la littérature.

Chapitre 1

Laser femtoseconde. Nanostructures

1.1 Introduction

Le laser a 50 ans. Depuis le laser à rubis de Théodore Maiman en 1960¹, il a considérablement changé notre vie de tous les jours : de l'imprimante laser (1975) au DVD Blue Ray(2003) en passant par les applications médicales (correction de la myopie en 1995), les communications à très haut débit ($> 10\text{Gbit/s}$, jusqu'à 140Gbits/s pour les derniers prototypes), les systèmes de guidage des missiles,... etc.

Les sciences fondamentales ont aussi largement bénéficié de l'apport du laser : la mesure précise de la distance Terre-Lune (1969), la fusion par confinement inertiel, la stroboscopie par impulsions femtosecondes permettant de suivre en temps réel une réaction chimique (1999), le refroidissement des atomes à des températures de l'ordre du μK (Laboratoires Bell 1987) jusqu'à l'obtention d'un condensat de Bose-Einstein (Cornell et Weiman 1995) où les atomes sont dans un même état quantique (tout comme les photons dans un laser),... etc.

La théorie du laser de durée d'impulsion ultrabrève et ses principales composantes remonte aux débuts des années 1960. Mais les systèmes femtosecondes ne se sont démocratisés qu'aux début des années 1990 avec l'apparition du laser à l'oxyde d'aluminium Al_2O_3 dopé au titane (Ti-Saphir) [1, 2]. Dans ce chapitre, on commencera par donner

¹Un peu d'histoire : c'est Einstein qui a prédit en 1917 le phénomène d'émission stimulée, la base première du fonctionnement du laser. En 1949, Albert Kestler décrit le principe de l'inversion de population par un mécanisme de pompage optique, autre base du laser. Charles Townes met au point le Maser en 1954, l'ancêtre du laser fonctionnant dans le domaine des micro-ondes.

un aperçu de la théorie de la génération des impulsions ultrabrèves et quelques techniques utilisées dans ces lasers. Nous citons également quelques applications pratiques qui sont exclusivement dues au laser femtoseconde ou encore celles qui ont bénéficié des avantages qu'il apporte.

Dans la seconde partie de ce chapitre, nous discutons des nanostructures en résumant les observations expérimentales relevées dans la littérature.

1.2 Génération des pulses ultracourts

L'adjectif ultrabrève, ou encore ultracourte, désigne généralement le domaine de durée d'impulsion inférieure à la picoseconde (10^{-12} s). Pour avoir un pulse ultracourt, la condition fondamentale qui doit être remplie est donnée par l'analyse de Fourier. En effet, la durée de l'impulsion est inversement proportionnelle à sa largeur spectrale.

Par exemple, une impulsion gaussienne de 1 ps, présente une largeur spectrale relative $\Delta\nu/\nu_0 = 10^{-3}$ pour une longueur d'onde centrale de 620 nm, soit une bande (à mi-hauteur) de longueur d'onde $\Delta\lambda = 0.62$ nm qui ne représente qu'une partie infime du spectre visible. Alors que pour une impulsion de 10 fs, la largeur relative est $\Delta\nu/\nu_0 = 10^{-1}$, soit une bande de $\Delta\lambda = 62$ nm (15% du spectre visible). En fait, si on considère le spectre en entier, une impulsion de 10 fs contient tout le spectre visible.

Ainsi, en premier lieu, pour espérer avoir un laser qui délivre des impulsions de durée de l'ordre du femtoseconde (10^{-15} s), il faut avoir un matériau émettant une très large bande de fluorescence, de l'ordre de quelques centaines de nanomètres. Le saphir dopé au titane présente une largeur de bande exceptionnellement large de 200 nm centrée sur 750 nm².

Il est bien connu que dans une cavité laser, plusieurs modes peuvent s'y propager. Ces modes sont régulièrement séparés par une fréquence constante déterminée par les caractéristiques géométriques de la cavité ; elle est par exemple, de $c/2L$ pour une cavité Fabry-Perrot, où c est la vitesse de la lumière et L la longueur de la cavité.

Dans une cavité laser "ordinaire", ces différents modes ont des phases aléatoires et

²A titre de comparaison, la largeur de bande de l'argon est de 0.7×10^{-2} nm, celle du rubis est de 0.2 nm et elle est de 10 nm pour le Nd³⁺/YAG.

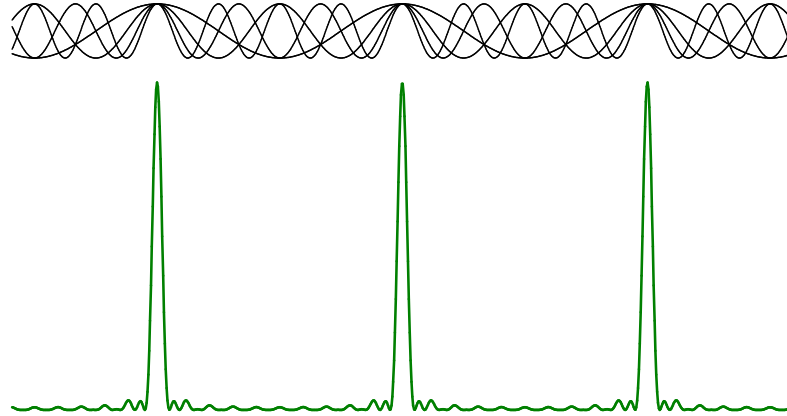


FIG. 1-1 – Exemple de signal obtenu avec 8 modes en phase.

des amplitudes irrégulières qui, sommées, donnent naissance à un rayonnement laser avec une fréquence et une intensité moyennes constantes parasitées par un bruit aléatoire. La mise en phase de ces différents modes, à un instant bien déterminé, se traduit par un train d'impulsions extrêmement fines. En effet, la superposition de plusieurs harmoniques en phase, de fréquences régulièrement espacées, donne un train d'impulsions d'autant plus fines et plus intenses qu'il y a de modes (Fig. 1-1). Ce processus est dit blocage de mode (*Mode-locking*). Il ne reste plus qu'à filtrer le résultat, c'est-à-dire éliminer le bruit indésirable entre deux pics successifs. Le système laser femtoseconde est principalement constitué de trois étages formant une boucle : un milieu amplificateur à large bande, un mécanisme de blocage de mode et un étage de compensation de la dispersion de la vitesse de groupe (Fig. 1-2).

1.3 Blocage de Mode

Il existe plusieurs techniques de blocage de mode [1] ; elles sont généralement classées en deux types : méthodes passives ou actives, selon que l'on fournit ou pas de l'énergie externe. Il existe cependant des systèmes qui combinent ces deux types de méthodes. Nous rappelons brièvement deux méthodes passives de blocage de modes : blocage de

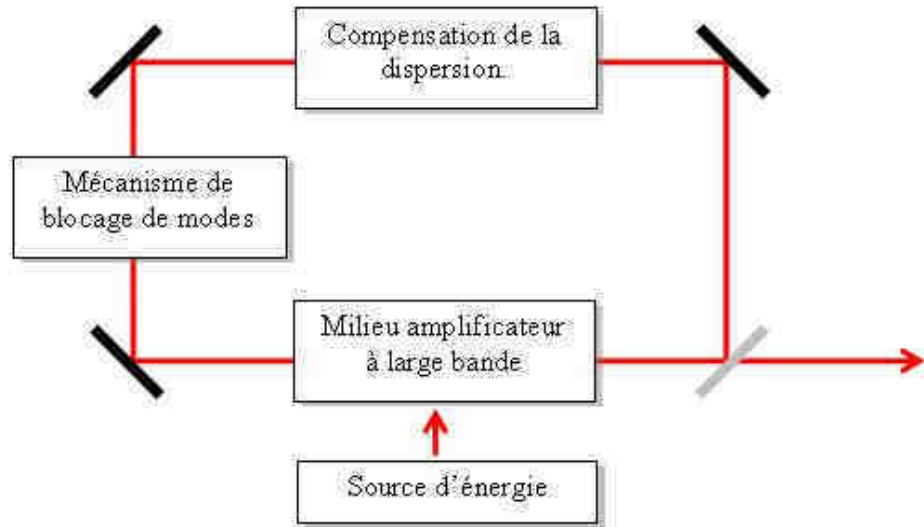


FIG. 1-2 – Schema résumant le principe de la génération d'impulsions ultrabrèves.

mode par un absorbant saturable et par un composant non linéaire.

1.3.1 Blocage de Mode par un absorbant saturable

C'est la méthode passive la plus ancienne, elle consiste à placer dans la cavité un absorbant saturable qui a pour but, avec le milieu amplificateur, de filtrer les pics de grande intensité, et ainsi favoriser les modes en phase [1]. Un absorbant saturable est un milieu dont le coefficient d'absorption décroît avec l'augmentation de l'intensité qui le traverse, c'est-à-dire, les faibles intensités sont les plus absorbées. Le modèle le plus simple (à deux niveaux d'énergie) donne un coefficient d'absorption sous la forme $\alpha = \alpha_0(1 + I/I_{sat})^{-1}$, où α_0 est le coefficient d'absorption linéaire et I_{sat} est l'intensité de saturation qui est défini comme l'intensité pour laquelle le coefficient d'absorption est égal à $\alpha_0/2$. Un absorbant saturable affecte un pulse gaussien qui le traverse en le comprimant temporellement (rétrécissement) tout en préservant son amplitude maximale.

Les solutions à colorant liquides sont les plus utilisées comme absorbant saturable, bien que des recherches tentent à les remplacer par des absorbants solides à base de semiconducteurs. La figure (1-3) donne un schéma simplifié d'un tel laser.

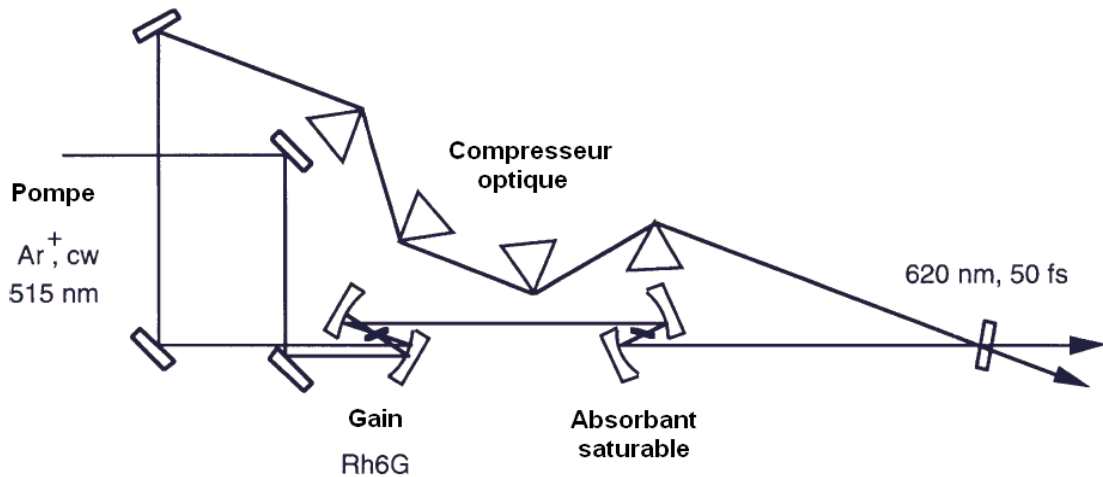


FIG. 1-3 – Schéma simplifié d'un laser basé sur un blocage de mode par absorbant saturable (ex. : éthylène glycol teinté par le DODICI)

1.3.2 Blocage de Mode par composant Non-Linéaire (SFG ou effet Kerr)

Une technique intéressante est celle qui est basée sur l'effet Kerr optique [3]. Dans un milieu présentant l'effet Kerr, l'indice de réfraction dépend de l'intensité du rayonnement, $n(I) = n_0 + n_2 I(r)$, avec $n_2 > 0$, ce qui a pour effet de changer le profil du faisceau gaussien qui le traverse par un effet d'auto-focalisation d'autant plus important que l'intensité I est élevée. En disposant une fente à l'endroit où la forte intensité est focalisée, on arrive à éliminer les composantes de faible intensité et donc à un blocage de mode (voir Fig.1-4).

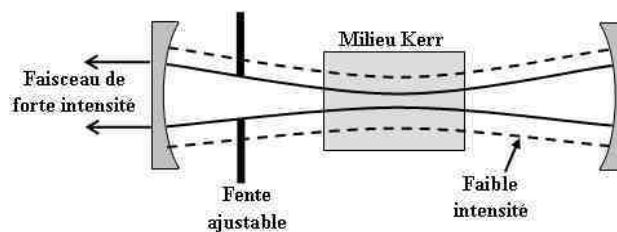


FIG. 1-4 – Principe du Blocage de Mode par effet Kerr.

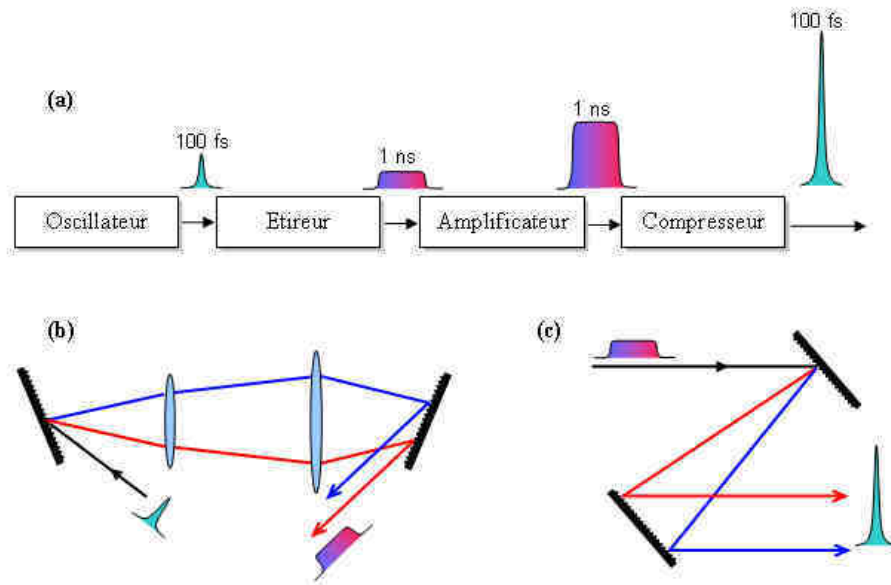


FIG. 1-5 – (a) Principe d’amplification des impulsions femtoseconde. (b) étireur à réseau et (c) compresseur à réseau.

1.4 Dispersion

La dispersion due au milieu amplificateur ou à l’absorbant saturable est un phénomène qui limite la génération des pulses ultracourts [1]. En effet, la dispersion en vitesse que les milieux induisent fait que les fréquences qui composent le pulse ont des vitesses différentes et sont donc séparées, les grandes fréquences à l’avant du pulse et les fréquences inférieures en arrière. Ceci induit un élargissement des impulsions : c’est le phénomène de *Chirping* (phénomène qu’on observe aussi dans la propagation des rayonnements dans les fibres optiques).

Il est indispensable de compenser cette dispersion pour avoir des pulses de plus en plus courts. Plusieurs méthodes sont utilisées. On en citera par exemple les compresseurs à prismes et à réseaux [1]. L’idée est de faire en sorte que les faibles fréquences parcourent une distance légèrement plus courte que celle parcourue par les hautes fréquences de manière à compenser le retard induit par la dispersion. Sur la figure 1-3, les quatre prismes jouent ce rôle de compresseur optique. Un autre type de compresseur est reproduit sur la figure (1-5.c). Il est basé sur l’utilisation de deux réseaux de diffraction.

1.5 Amplification

Un autre problème spécifique aux impulsions ultracourtes concerne leur amplification. La très grande concentration d'énergie de ces pulses fait que les méthodes habituelles d'amplification sont inutilisables. En effet, la puissance délivrée par ces lasers suffirait à détériorer, par des effets non-linéaires, tout matériau solide susceptible d'être utilisé comme milieu amplificateur. Pour pallier cette difficulté, on étire l'impulsion avant l'amplification pour ensuite la recomprimer. On évite ainsi les grandes puissances et la détérioration de l'amplificateur (Fig. 1-5.a). L'étireur est constitué de deux réseaux de diffraction qui ont pour but d'agire en sens inverse du compresseur optique, les différentes composantes du pulse sont séparées en parcourant des chemins optiques différents (Fig. 1-5.b). Cette technique est dite *Chirped Pulse Amplification* [4].

Le problème de cette technique est que l'étirement et la compression ne se compensent pas exactement, ce qui a pour effet d'introduire un allongement et des distorsions indésirables de l'impulsion amplifiée.

1.6 Applications du Laser femtoseconde

Les applications du laser femtoseconde sont nombreuses et variées, on se contentera de donner ici une liste qui est loin d'être exhaustive [1, 2] :

- Fusion nucléaire par confinement inertiel.
- Optique non linéaire comme la génération de seconde harmonique.
- Expériences pompe-sonde : pour observer des phénomènes très rapides tels que les réactions chimiques.
- Micro usinage : Les impulsions femtosecondes peuvent être utilisées pour le micro-usinage de nombreux types de matériaux, notamment à usage médical. Elles apportent l'énorme avantage de l'ablation athermique. La gravure, le perçage et la fabrication d'outillage médical millimétriques en sont des exemples.
- Nettoyage et restauration des œuvres d'arts.
- Fabrication de guide d'onde enterré par impression 3D.
- Dépôt de couches minces (*pulsed laser deposition* PLD). Cela consiste à irradier une cible d'un matériau donné par un faisceau laser à une fluence au-dessus du

seuil d’ablation. Un panache plasma (ions, électrons et des agglomérats) de très forte densité et à haute température est éjecté de la surface. Il se condense sur un substrat chauffé à une température élevée pour assurer la cristallisation du matériau.

- Médecine et biologie : Là aussi, le caractère athermique de l’ablation femtoseconde fait de ce laser un outil majeur dans la médecine et de la biologie modernes, on peut citer : chirurgie ophtalmologique, nano-dissection, texturation de bio-implants (pour favoriser l’accroche des tissus sur l’implant et diminuer le risque de rejet),...etc.
- Imagerie médicale (microscopie non-linéaire) : L’excitation à deux photons est une technique d’imagerie par microscopie à fluorescence qui permet de faire une image d’un tissu vivant à une profondeur d’un millimètre.
- Génération d’impulsions attosecondes.

1.7 Nanostructuration de la surface ablatée

Lorsqu’un matériau est irradié par un rayonnement laser, une partie de cette énergie est absorbée par les électrons de conduction et le réseau cristallin, la température de la cible augmente très rapidement. Si l’intensité est suffisante, une partie du matériau est éjectée violemment sous forme de plasma d’électrons, d’ions et d’agrégats. Un cratère se forme sur la surface de la cible avec des dimensions, profondeur et rayon, qui dépendent de la forme du faisceau laser et de sa fluence. Après cette ablation, souvent on observe sur le fond du cratère et sur les bords, la formation de structures périodiques de période spatiale proche de la longueur d’onde du laser, à savoir, quelques centaines de nanomètres. Ces structures périodiques sont désignées par l’acronyme LIPSS pour *Laser-Induced Periodic Surface Structures*, que l’on peut traduire par : Structures périodiques de surface induites par laser.

Les paragraphes suivants, résument les propriétés de ces nanostructures déduites des expériences tirées de la littérature.

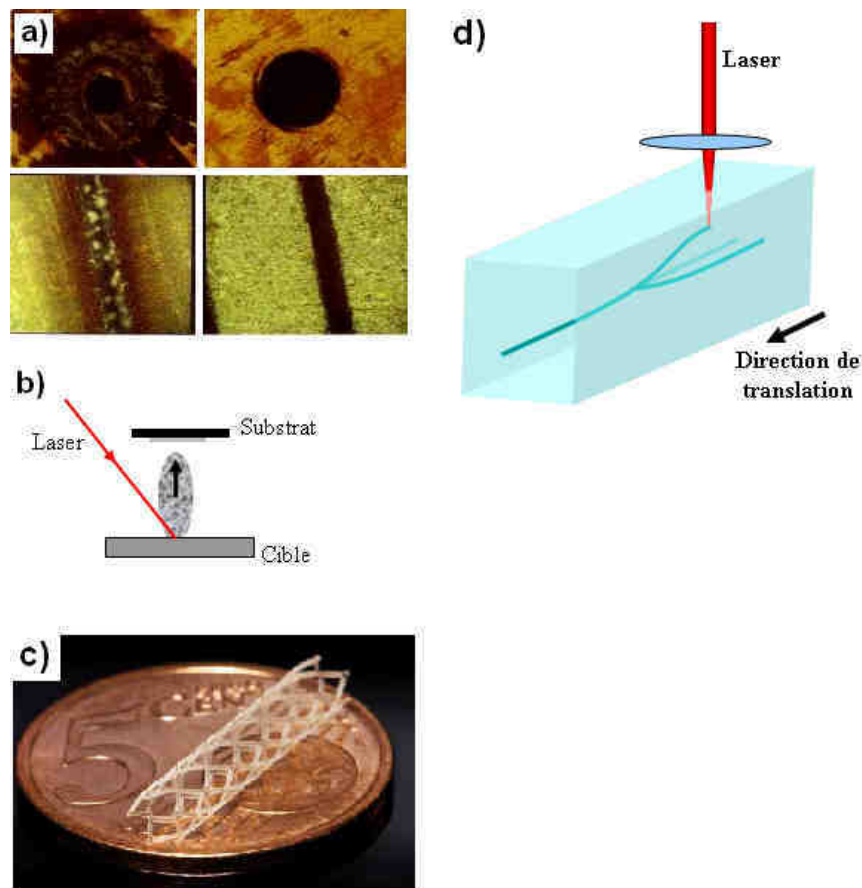


FIG. 1-6 – Quelques exemples des applications des lasers femtosecondes. a) Usinage du cuivre en haut et du fer en bas avec un laser nanoseconde (à gauche) et femtoseconde (à droite) ; peu de dommages collatéraux. b) Dépôt de couches minces : le panache plasma est éjecté à une vitesse suffisamment grande pour sa condensation sur le substrat. c) Tube en bio polymère (né d'une collaboration entre l'Université Jean Monnet de St Etienne, et des entreprises privées). d) Schéma descriptif de la technique d'inscription 3D d'un guide d'onde (ici splitter optique 1x3) dans un cristal de silice.

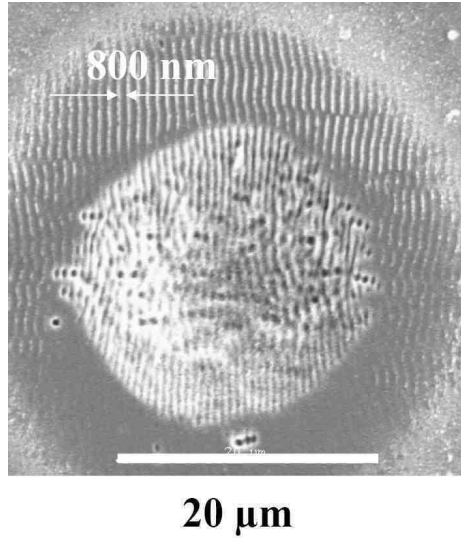


FIG. 1-7 – Vue globale d’un cratère sur une surface de cuivre pur, obtenue par 30 pulses de 60 fs d’un laser à 800 nm, à faible fluence ($< 1 \text{ J/cm}^2$). Image de A.Semerok (CEA Saclay-PLANI, DPC/SCP/LILM).

1.7.1 Les stries (*ripples*)

Le premier qui a observé la formation de structures périodiques filiformes (stries ou ondulations, *ripples* en anglais, voir la figure 1-7) nanométriques sur la surface d’un semiconducteur irradié par un laser impulsionnel est Birnbaum en 1965 [5]. Depuis, le grand nombre de travaux effectués a montré les propriétés suivantes des stries [6] :

- elles se forment sur les matériaux métalliques, semi-conducteurs et diélectriques (Fig.1-8) ;
- les stries sont généralement perpendiculaires à la polarisation du laser, bien que des stries parallèles peuvent être observées dans certains cas, elles restent toutefois rares [7, 12] ;
- la période des stries est proche de la longueur d’onde du laser ;
- elles sont obtenues pour des durées d’impulsions allant du nano au femtoseconde ;
- elles se forment à des fluences légèrement au dessus du seuil d’ablation à un pulse ou avec un nombre de pulses modéré [15].

Dans le cas d’un laser polarisé circulairement, l’expérience montre la formation de nanoparticules (Fig.1-9-d). On peut l’expliquer simplement par la superposition de deux ondes polarisées linéairement dans deux directions perpendiculaires l’une par rapport à l’autre. On trouve cette structure dans la référence [10] pour des impulsions nano-

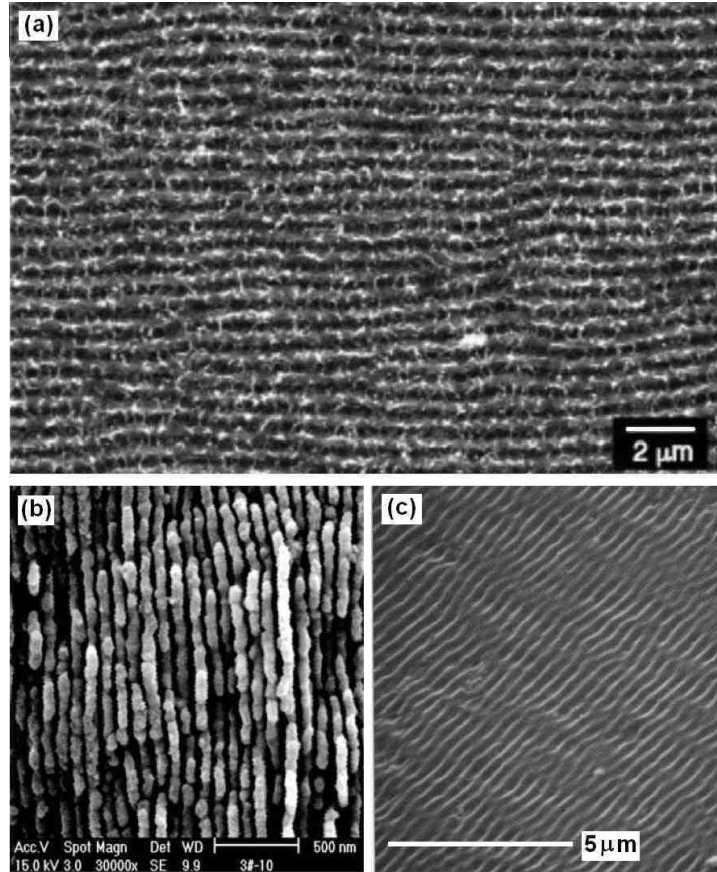


FIG. 1-8 – Vue rapprochée des stries (*ripples*) formées sur la surface d'une cible de a) Tungstène par 50 pulses laser de 150 fs, de longueur d'onde centrale 800 nm, de polarisation linéaire et à une fluence de 445 mJ/cm^2 [8] ; b) 6H-SiC, 500 pulses de 130 fs, 400 nm et une fluence de 795 mJ/cm^2 [9] ; c) Diamant, 100 pulse de 380 fs, 248 nm à une fluence de 1.5 J/cm^2 [11]. Dans ces trois cas, les ondulations sont perpendiculaire à la polarisation.

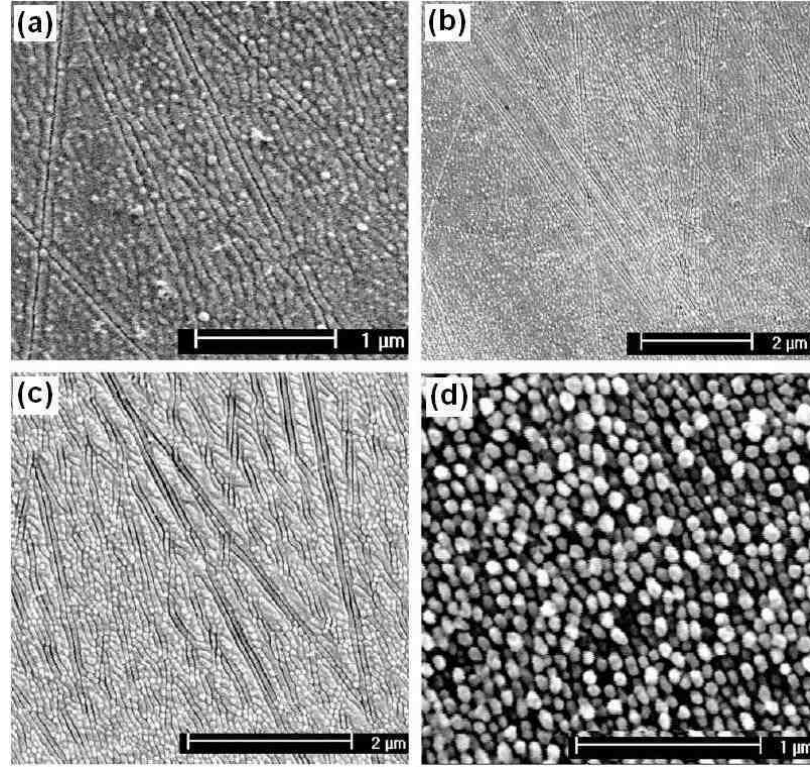


FIG. 1-9 – Evolution de la formation des nanoparticules de SiC produit par un laser de 400nm polarisé circulairement (1.75 J/cm^2), (a) 10 pulses, (b) 20 pulses, (c) 50 pulses et (d) 100 pulses. [9]

secondes (25 ns) sur du Germanium et dans la référence [9] dans le cas d'impulsions femtosecondes. La figure (1-9) présente l'évolution de la formation des nanoparticules sur la surface d'une cible en SiC irradiée par des impulsions de 130 fs. Au debut il se forme des stries à 45° des deux polarisations, puis l'apparition progressive des nanoparticules avec l'augmentation du nombre de pulses.

Avec l'avènement du laser femtoseconde, la situation s'est un peu compliquée. L'expérience a montré que les LIPSS formés par des impulsions femtosecondes ($\lesssim 500 \text{ fs}$) ont une périodicité spatiale inférieure à la longueur d'onde du laser. Sur la figure (1-8), par exemple, les périodes des stries dans les cas (a), (b) et (c) sont, respectivement, 500 nm ($\sim 0.6\lambda$), 80 nm ($\sim 0.2\lambda$) et 250 nm ($\sim \lambda$).

De plus, l'apparition des LIPSS et leur période varient en fonction du nombre d'impulsions, de la durée de celles-ci et de la fluence du laser [17]. La référence [14] donne cette variation de la période en fonction du nombre de pulses dans le cas du

Platine irradié par un laser de 800 nm à une fluence de 84 mJ/cm² :

Nombre de Pulse	Période des stries (μm)
30	0.62
50	0.58
100	0.57
200	0.55
500	0.55

Autre spécificité liée au régime femtoseconde, la coexistence de deux types de LIPSS selon leurs périodes spatiales [15] :

- Les LIPSS à faible fréquence, ou LSFL pour «*Low Spatial Frequency LIPSS*», sont les structures mentionnées auparavant, qui ont une période proche de la longueur d’onde ;
- Les LIPSS à fréquence élevée, ou HSFL pour «*High Spatial Frequency LIPSS*», toujours perpendiculaires à la polarisation, mais qui ont une période beaucoup plus petite que la longueur d’onde du laser (voir la figure 1-10 dans le cas du diamant et la figure 1-11 dans le cas d’un semiconducteur) ; à la différence des LSFL, et dans le cas des semiconducteurs, ces structures n’apparaissent généralement que lorsque l’énergie du photon est inférieure au gap [16]³.

L’apparition des deux structures en même temps ou l’une sans l’autre est possible d’après les expériences rapportées dans la référence [59] dans le cas d’un monocristal de ZnO (Fig.1-11). Cela dépend de la fluence et du nombre de pulses. Pour une longueur d’onde de 800 nm et une durée d’impulsion de 200 fs, la période des LSFL va de 630 à 730 nm et celle des HSFL de 200 à 280 nm pour des fluences allant de 0.4 à 0.8 J/cm² et un nombre de pulses allant de 1 à 1000 impulsions (Fig.1-12). Cependant, aucune relation claire n’a été tirée par les auteurs de ces résultats, mis à part que l’intervalle de la fluence où apparaissent les HSFL augmente avec le nombre d’impulsions. Malheureusement, nous n’avons pas trouvé dans la littérature une étude semblable sur des cibles métalliques.

³Bien que la référence [15], rapporte la formation des HSFL sur l’InP dans le cas de photon d’énergie supérieure au gap avec un nombre de pulses très réduit, de 5 à 30.

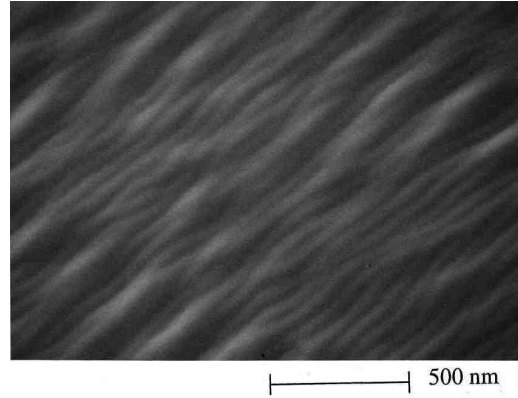


FIG. 1-10 – Vue détaillée de la surface du diamant de la figure 1-8-(c). On y constate l'existence de deux types de stries : LSFL de période ~ 250 nm et HSFL de période ~ 80 nm. [11]

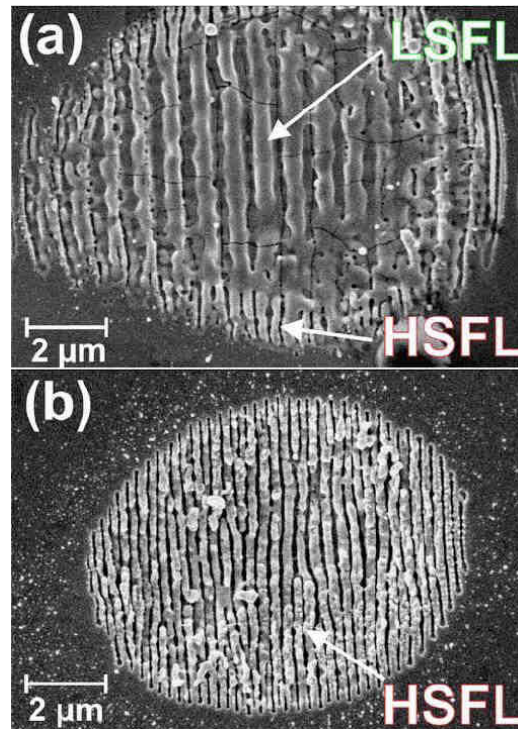


FIG. 1-11 – Les deux types de structures sur un monocristal de ZnO; (a) Fluence de 0.62 J/cm^2 avec 10 pulses et (b) 0.48 J/cm^2 avec 50 pulses. Dans les deux cas $\lambda = 800 \text{ nm}$ et $\tau = 200 \text{ fs}$. [59]

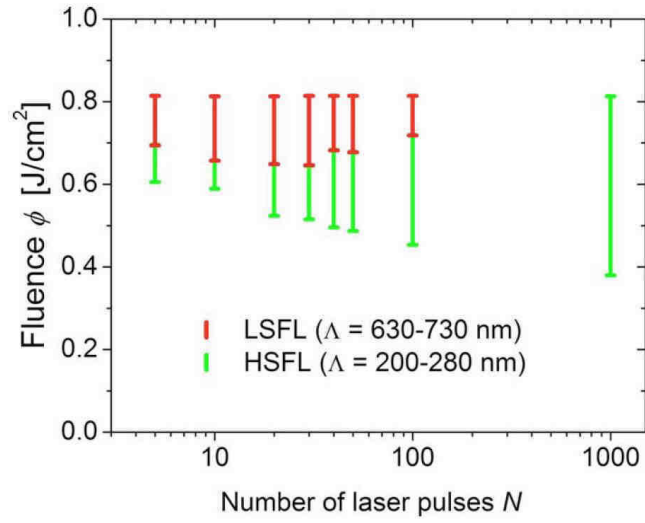


FIG. 1-12 – Domaines de fluences où les LSFL et les HSFL apparaissent sur une cible de ZnO en fonction du nombre de pulses, $\lambda = 800$ nm et $\tau = 200$ fs. Pour un grand nombre d'impulsions, seuls les HSFL se forment. [59]

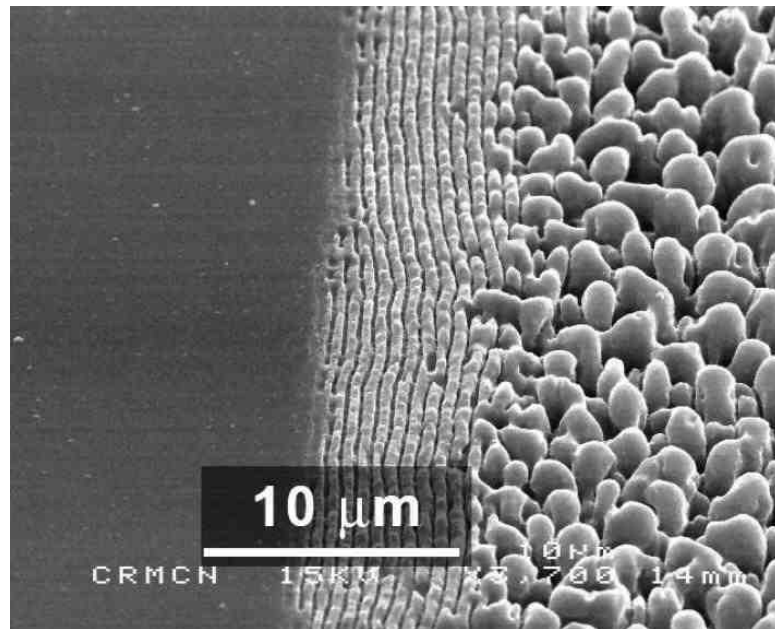


FIG. 1-13 – Structures en perles (*beards*) au centre du cratère et des stries sur les bords où l'énergie est plus faible. Initialement, seules les stries sont présentes [18].

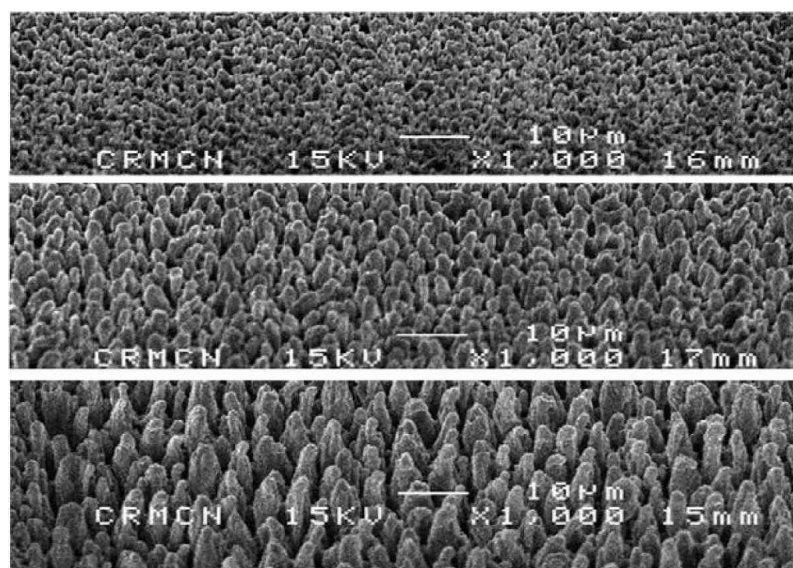


FIG. 1-14 – Formation des cônes arrondis (*penguin-like*) sur la surface du silicium : en haut à 250 mJ/cm^2 , au milieu 400 mJ/cm^2 et en bas à 850 mJ/cm^2 . La pression est de 10^{-5} mbar . On remarque bien le creusement qui augmente avec la fluence. [18]

1.7.2 Les autres structures

En augmentant l'énergie et le nombre de pulses, d'autres types de structures se forment à la suite des stries. Ces dernières constituent la forme de base. En augmentant le nombre de pulses, des structures en forme de perles (*beads* en anglais) se forment progressivement après les stries (Fig.1-13). Elles ont une dimension d'environ $2 \mu\text{m}$ de diamètre.

L'absorption de l'énergie par ces perles n'étant pas uniforme, en augmentant encore la fluence et le nombre de pulses, l'ablation est plus prononcée dans les vallées entre les perles qu'à leurs sommets, ce qui conduit à les creuser de plus en plus. Les perles s'affinent progressivement pour former une nouvelle structure conique à tête arrondie (dite *penguin-like*⁴, Fig.1-14), si l'ablation se fait dans le vide [18], ou à tête pointue (*spikes*, Fig.1-15) si l'ablation se fait en présence d'un gaz [20]. L'espacement entre ces cônes est de 2 à $5 \mu\text{m}$ pour une hauteur d'environ $10 \mu\text{m}$.

⁴ Appelée ainsi parce que l'image de ces structures rappelle l'image d'une colonie de pingouins.

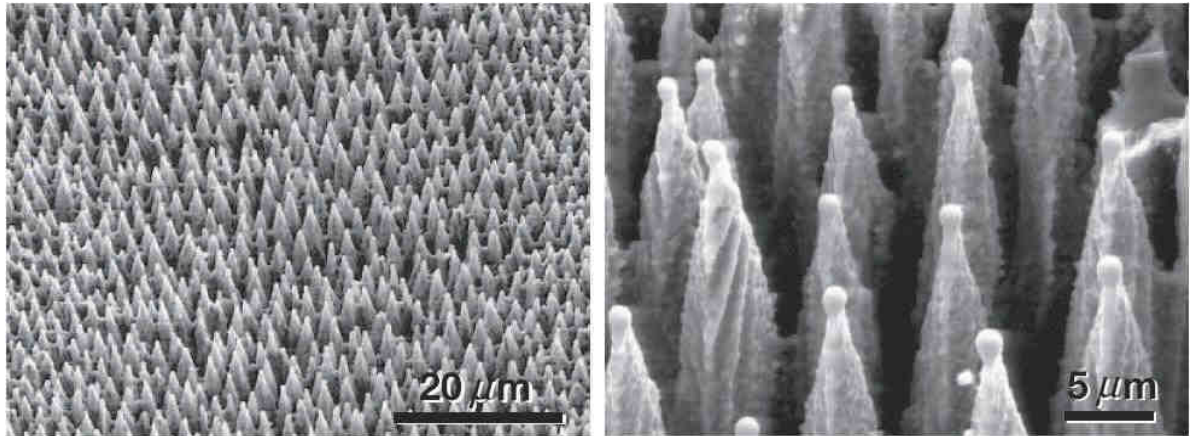


FIG. 1-15 – Structures côniques (*spikes*) sur une surface de silicium irradiée par une centaine de pulses de 100 fs à une fluence de 1 J/cm^2 dans un environnement de SF_6 à 0.67 bar [20].

1.7.3 Intérêts pratiques dans le photovoltaïque et la détection

Les propriétés optiques des ces surfaces nano- ou micro-structurées sont très différentes de celles des surfaces non-structurées.

Le silicium est le semi-conducteur le plus utilisé dans l'industrie optoélectronique. Il a les avantages de bien absorber dans le domaine visible, d'être abondant dans la nature⁵ et d'un coût de fabrication relativement faible. Le Si cristallin présente un gap indirecte de 1.07 eV. L'utilisation du Si dans les photodiodes limite le spectre de détection au dessous du proche infrarouge ($< 1.1 \mu\text{m}$), et son utilisation dans les cellules photovoltaïques fait perdre un tiers du rayonnement solaire qui n'est pas converti en électricité (Fig.1-16).

La texturisation du silicium par laser femtoseconde présente deux propriétés qui ouvrent la voie à d'intéressantes perspectives d'applications, notamment dans les deux exemples cités plus haut : la photodétection et la production d'énergie renouvelable photovoltaïque. En effet, la morphologie des micro-structures et le changement dans la structure du cristal (donc changement de la structure de la bande d'énergie) induits par l'irradiation font que :

⁵25.7% de la croûte terrestre, on le retrouve notamment dans le sable et dans le quartz sous forme de silice (SiO_2).

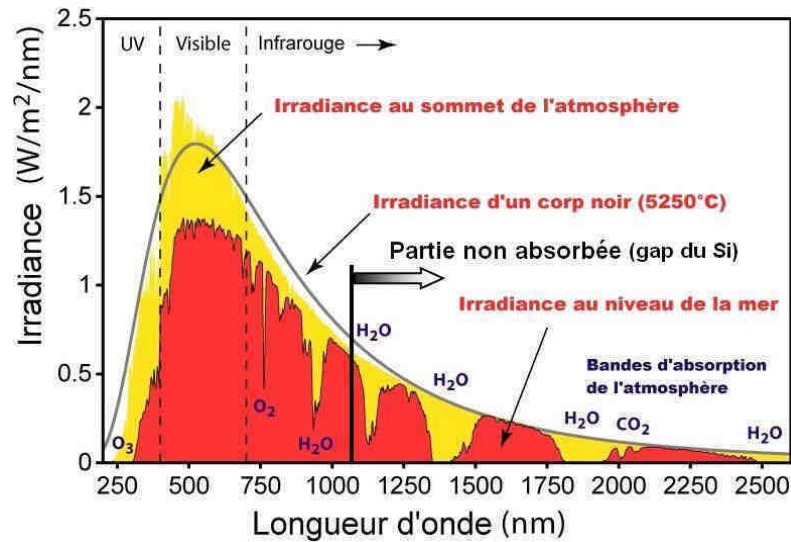


FIG. 1-16 – Spectre du soleil. Le gap du Silicium est de 1.07 eV, un photon d'énergie inférieure à cette valeur n'est pas absorbé (sauf par des processus multi-photoniques, qui restent cependant très faibles dans ce domaine d'intensité lumineuse). Ceci correspond à des longueurs d'ondes supérieures à 1100 nm.

- l'absorption augmente dans le domaine d'absorption du Si [19] ;
- le spectre d'absorption s'élargit au-delà de la limite du gap [20].

La figure (1-17) montre l'absorptance⁶ de surfaces de Si traitées par différentes méthodes de texturisation : par traitement laser (ici, ablation dans le vide, les cônes arrondis de la figure 1-14), par action chimique d'un alcalin et, finalement, par attaque à l'acide (*acidic etching*). Au vu de la figure (1-17), on constate que la structuration par laser permet un rendement supérieur et plus uniforme sur la bande allant de 350 à 1000 nm (visible et proche infrarouge⁷) [19].

La figure (1-18) montre l'absorptance d'une surface traitée par laser dans un environnement de SF₆ (les cônes pointues, *spikes*, de la figure 1-15) comparée à une surface polie. Dans cette étude [20], le spectre balayé est plus important que celui de la référence [19], de 250 nm jusqu'à 2500 nm. Elle montre clairement un saut de l'absorptance dans l'IR d'environ 0.10 à plus de 0.90, avec une relative constance, et dans l'UV d'environ 0.30 à 0.95 [20]. C'est un comportement idéal pour la fabrication de diodes

⁶Expérimentalement, c'est la réflexion et la transmission qui sont mesurées, l'absorption est déduite par la relation $A(\lambda) = 1 - R(\lambda) - T(\lambda)$.

⁷D'où le nom de *black Silicon* donné au silicium traité présentant une forte absorption sur le visible.

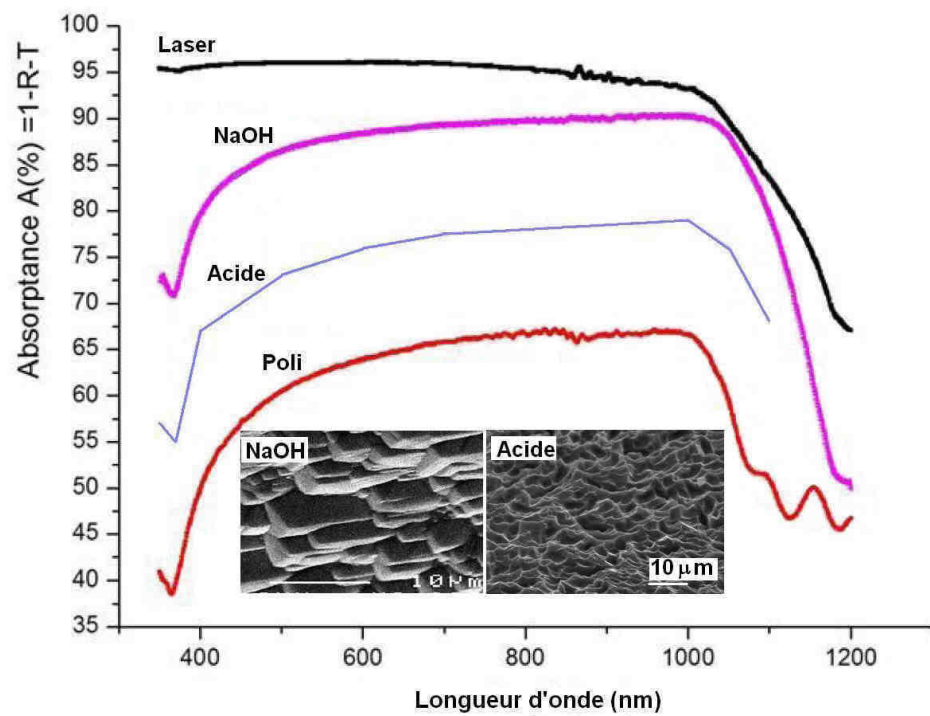


FIG. 1-17 – Absorptance de la surface de Si dans le cas de texturation par laser, par un alcalin (NaOH) et par un acide (HF/HNO₃). Ces deux méthodes chimiques sont celles utilisées industriellement, les deux encadrés présentent des images SEM de leurs textures, [21], à comparer avec la texture *penguin-like* due au laser de la figure (1-14). [19]

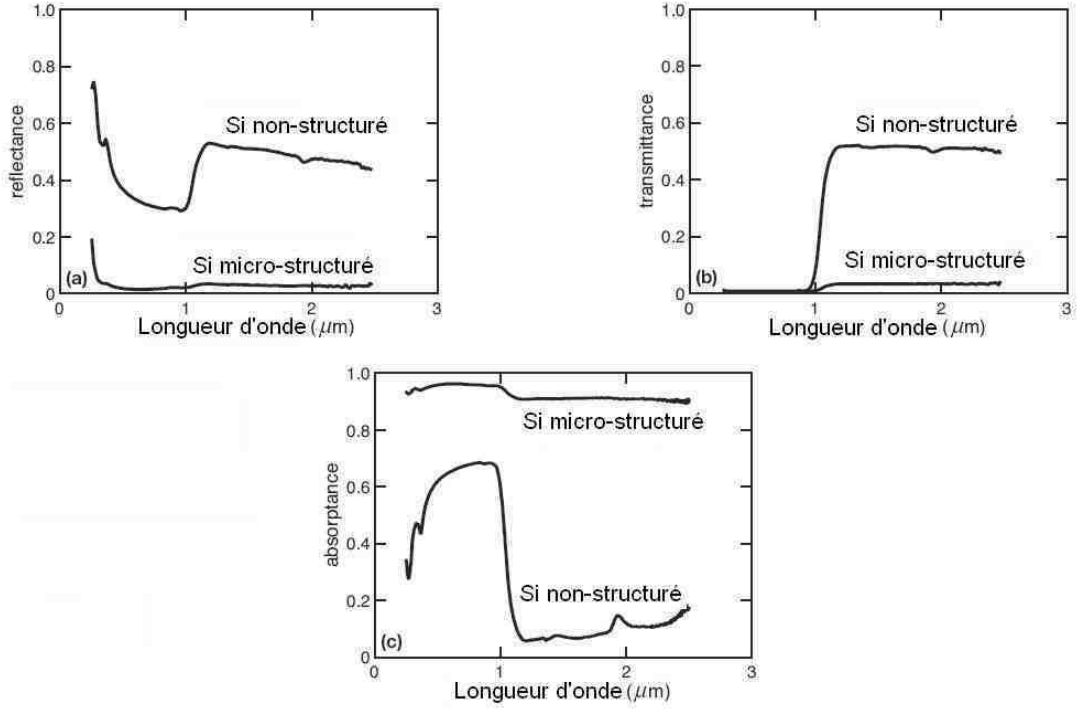


FIG. 1-18 – Réflexion, transmission et absorption comparées d’une surface de n -Si non structurée et une autre traitée par 500 pulses laser de 100 fs, à une longueur d’onde centrale de 800 nm et à une fluence de 0.8 J/cm^2 dans un environnement de SF_6 . [20].

destinées à la photodétection.

Plusieurs gaz ont été testés pour la formation des *spikes* : air, N_2 , H_2 , Cl_2 , H_2S et SF_6 . L’expérience a montré que l’absorption dans le domaine au-dessous du gap n’augmente fortement que dans les cas de SF_6 et H_2S . Bien que la cause de cette augmentation ne soit pas encore connue, l’auteur suggère le rôle probablement important du soufre [20].

Chapitre 2

Processus d'interaction rayonnement-matière

2.1 Introduction

Pour décrire le phénomène d'ablation d'un solide, c'est à dire l'éjection d'un plasma à la suite de l'absorption d'un rayonnement laser, il est impératif de ne pas s'arrêter à la quantification de l'énergie absorbée uniquement et d'aller plus loin en étudiant les mécanismes élémentaires responsables de cette absorption.

Le mécanisme d'ablation des métaux dans le régime femtoseconde, suit, schématiquement, les étapes suivantes :

- absorption de l'énergie du laser par le sous-système électronique ;
- transfert de l'énergie électronique au réseau par collisions, on parle de relaxation ;
- éjection d'une partie du matériau sous forme d'un plasma.

L'ablation dans le cas des semi-conducteurs et des diélectriques est identique au cas des métaux avec, cependant, une étape supplémentaire qui est l'ionisation. En effet, la densité électronique étant beaucoup plus faible que dans les métaux¹, une partie de l'énergie sert à l'ionisation du matériau par absorption (voir le paragraphe 2.2) en premier lieu (quelques fs $\ll \tau_{pulse}$), puis le reste est absorbé par les électrons de

¹La densité électronique est de l'ordre de 10^{28} m^{-3} dans les métaux, de 10^{19} à 10^{27} m^{-3} dans les semi-conducteurs, elle est inférieure à 10^{19} m^{-3} dans les isolants.

conduction dont la densité a considérablement augmenté.

Dans ce chapitre nous exposons les deux premières étapes de l'ablation : l'absorption et la relaxation de l'énergie. La troisième étape qui concerne la dynamique de l'éjection du plasma fera l'objet du chapitre prochain.

2.2 Mécanismes d'absorption d'un rayonnement électromagnétique

Les processus élémentaires d'absorption d'un rayonnement par la matière sont les mêmes dans tous les types de matériaux : diélectriques, semi-conducteurs et métaux. Ce qui rend le comportement de ces matériaux si différent c'est la prédominance de certains de ces processus par rapport à d'autres. Dans les métaux, l'énergie est directement transmise au nuage très dense d'électrons libres. Dans les diélectriques, le mécanisme est plus complexe. En effet, la densité d'électrons libres étant très faible, une partie de l'énergie crée d'abord des porteurs libres par ionisation multiphotonique, qui vont absorber ensuite une autre partie de celle-ci. Enfin, une partie non négligeable de l'énergie est aussi absorbée par les états localisés dans le gap (défauts et impuretés) qui ont une section efficace plus grande que celle de l'ionisation multiphotonique d'ordre supérieur.

Commençons par décrire les processus d'absorption les plus importants. Le lecteur est renvoyé aux références [22–25] pour une description plus détaillée.

2.2.1 Bremsstrahlung inverse

Le transfert de l'énergie du champ électromagnétique du laser aux électrons libres se fait essentiellement par le processus de Bremsstrahlung inverse (appelé aussi absorption collisionnelle). En présence d'un potentiel extérieur (atome ou ion), l'électron libre peut échanger de l'énergie avec un champ électromagnétique externe. L'électron passe d'un niveau d'énergie du continuum à un autre niveau supérieur en acquérant une

accélération. Le coefficient d'absorption de ce processus est [30] :

$$\alpha_{BI}(\text{cm}^{-1}) = \frac{\nu_{ec}}{c} \frac{(n_e/n_{cr})^2}{\sqrt{1 - \frac{n_e}{n_{cr}}}} \quad (2.1)$$

où n_e et n_{cr} sont les densités électronique et critique² respectivement et ν_{ec} est la fréquence de collision à la densité critique. Cette expression montre que l'absorption par Bremsstrahlung inverse est plus efficace au voisinage de la densité critique. Pour les métaux, cette densité est en moyenne égale à $3 \times 10^{27} \text{ m}^{-3}$ dans le spectre visible et le proche infrarouge. Elle est dix fois plus petite que la densité électronique. C'est ce qui explique la très faible longueur de pénétration de la lumière dans les métaux (quelques dizaines de nanomètres).

2.2.2 Absorption intra-bande et ionisation

Sur la figure (2-1), nous avons représenté la structure de bande d'énergie d'un solide cristallin parfait. Quelques transitions inter-bandes (ionisation) et intra-bandes possibles par absorption du rayonnement électromagnétique y sont représentées. Si la largeur de la bande interdite est plus petite que l'énergie du photon incident, l'ionisation se fera à un seul photon (optique linéaire). Cependant, du fait des intensités des rayonnements des sources actuelles (laser femtoseconde notamment), même si l'énergie du photon est plus petite que la bande interdite, ces transitions seront toujours possibles par absorption de plusieurs photons à la fois : c'est l'absorption multiphotonique. Sur cette même figure, on a représenté des transitions à deux et trois photons.

La possibilité des transitions multiphotoniques fait qu'aucun matériau n'est transparent à un rayonnement suffisamment intense (c'est le cas par exemple de l'ablation femtoseconde : les matériaux utilisés vont de la matière vivante au diamant).

Dans un cristal réel, sont présents des défauts et des impuretés plus ou moins nombreux qui peuvent influencer grandement sur ses propriétés. En effet, ils peuvent introduire des niveaux d'énergie supplémentaires dans la bande interdite. En plus des transitions

²La fréquence plasma électronique est par définition $\omega_{pe}^2 = \frac{e^2 n_e}{\epsilon_0 m_e}$. On définit la densité électronique critique n_{cr} comme la densité au delà de laquelle une onde électromagnétique de pulsation ω_0 ne se propage plus dans un matériau. C'est la densité qui correspond à $\omega_{pe} = \omega_0$, soit $n_{cr} = \frac{\epsilon_0 m_e \omega_0^2}{e^2}$ (voir le modèle de Drude-Lorentz)

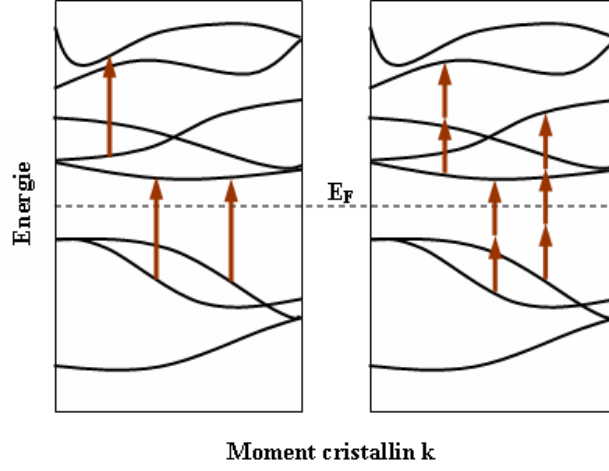


FIG. 2-1 – Exemple d’une structure en bande d’un cristal idéal. Les flèches représentent les transitions électroniques possibles à un photon à gauche, multiphotoniques à droite. E_F est l’énergie de Fermi.

décrites plus haut, on aura l’apparition de nouvelles transitions possibles d’énergie inférieure au gap. Un schéma qui résume ces transitions est donné dans la figure (2-2). Ce type de transitions est notamment très important dans l’interaction rayonnement-diélectrique. Le cas (a) de la figure (2-2) représente l’ionisation multiphotonique, le cas (b) représente la transition d’un état de défaut qui se trouve dans la bande interdite vers un état se trouvant aussi dans la bande interdite, l’électron reste localisé et la désexcitation donne un rayonnement de luminescence.

Le cas (c) est semblable au cas (b) sauf que l’électron se trouve dans la bande de conduction, il n’est plus localisé et le défaut a augmenté son état d’ionisation.

L’étude des sections efficaces des différentes transitions montre qu’à fluences identiques, les impulsions courtes favorisent les transitions multiphotoniques par rapport aux transitions dues aux défauts. La conséquence de ceci est que le seuil de claquage du matériau augmente si l’on travaille avec des impulsions ultracourtes. En d’autres termes, on peut utiliser des intensités laser très élevées sans toutefois atteindre le seuil de claquage des matériaux [27].

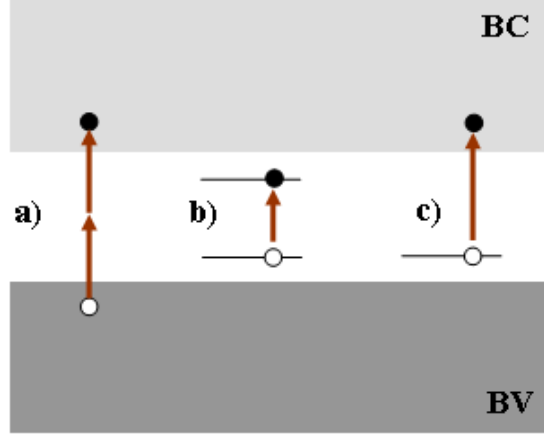


FIG. 2-2 – Bandes d'énergie d'un cristal réel, ici c'est le cas d'un isolant. a) Transition interbandes. b) Transition entre états de défauts et c) ionisation d'un état de défaut.

2.2.3 Diffusion

A ces processus d'absorption s'ajoutent les processus élémentaires de diffusion. Plusieurs de ces interactions collectives peuvent survenir lors de l'absorption de l'énergie du laser. Ces interactions sont de type onde-onde ou onde-particule. Dans le second cas on y trouve la diffusion Compton qui ne se produit qu'avec des photons de hautes énergies (rayons X). Elles n'interviennent pas ici puisque les lasers femtosecondes les plus courants, émettent dans l'infrarouge et le visible. Dans les interactions onde-onde, les équations de conservation de l'énergie et du moment conduisent aux deux relations³ :

$$\begin{aligned}\omega_0 &= \omega_1 + \omega_2 \\ \vec{k}_0 &= \vec{k}_1 + \vec{k}_2\end{aligned}\tag{2.2}$$

ainsi que les relations de dispersion des différentes ondes mises en jeu, permettent de trouver les processus suivants :

Absorption résonante (*parametric decay instability*). Dans le cas où la fréquence du laser est égale à la fréquence plasma (ou encore $n_e = n_{cr}$), l'équation de ce processus

³L'indice 0 concerne la particule incidente alors que les indices 1 et 2 concernent les particules diffusées.

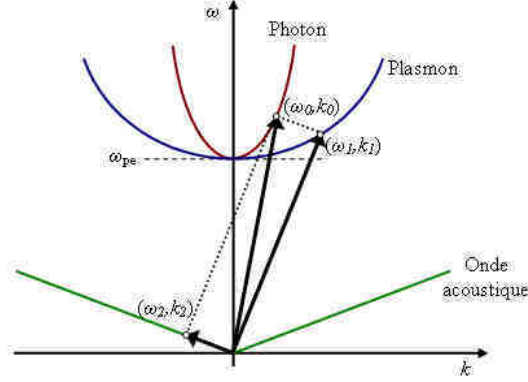


FIG. 2-3 – Diffusion résonante dans l'espace $\omega - k$. Le photon incident donne naissance à une onde ionique et un plasmon. Les courbes représentent les courbes de dispersion des ondes électromagnétique, électronique et ionique.

est (Fig.2-3)

$$\text{Photon} \longrightarrow \text{Onde ionique} + \text{Plasmon}.$$

La diffusion Raman stimulée (*Stimulated Raman Scattering*). L'équation de ce processus est

$$\text{Photon} \longrightarrow \text{Photon} + \text{Plasmon}.$$

Il est schématisé sur la figure (2-4) [28]. Le calcul montre que la diffusion Raman ne peut se produire qu'à la condition (en volume)

$$\omega_0 > 2\omega_{pe} \quad \text{ou} \quad n_e < \frac{n_{cr}}{4}.$$

Ce processus est décrit un peu plus en détail plus loin lors de l'étude de la formation des nanostries sur la surface d'un solide irradié par des impulsions laser femtosecondes. En effet, certains auteurs indiquent que ce processus est à l'origine de ce phénomène (mais avec des plasmons de surface).

La diffusion Brillouin stimulée (*Stimulated Brillouin Scattering*). Cette diffusion ne peut se produire que pour $\omega_0 > \omega_{pe}$, ou $n_e < n_{ec}$. L'équation de ce processus,

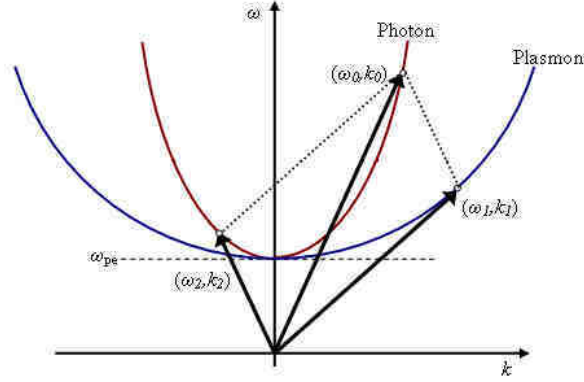


FIG. 2-4 – Diffusion Raman stimulée dans l'espace $\omega - k$. Le photon incident donne naissance à un plasmon de volume et un photon retrodiffusé.

schématisé sur la figure (2-5) est :

$$\text{Photon} \longrightarrow \text{Onde ionique} + \text{Photon}.$$

Dans le cas de l'interaction avec un solide, les ondes ioniques sont des phonons acoustiques (diffusion Brillouin) ou optiques (diffusion polariton) [29].

Absorption à deux plasmons (*Two-plasmon instability*). A une fréquence laser double de la fréquence plasma, c'est-à-dire, pour $n_e = n_{cr}/4$, le photon peut créer deux plasmons :

$$\text{Photon} \longrightarrow \text{Plasmon} + \text{Plasmon}.$$

Vu l'inertie des ions relativement lourds, lors de l'interaction d'un laser femtoseconde-solide, la totalité de l'énergie est absorbée par le système électronique (par effet Bremsstrahlung inverse, par diffusion de Raman ou par absorption à deux plasmons). Les ions ne "voient" en aucun cas l'impulsion femtoseconde. Les diffusions ou absorptions qui impliquent les ondes ioniques (des phonons dans la phase solide) n'ont d'importance que dans le cas d'impulsions picosecondes et au-delà.

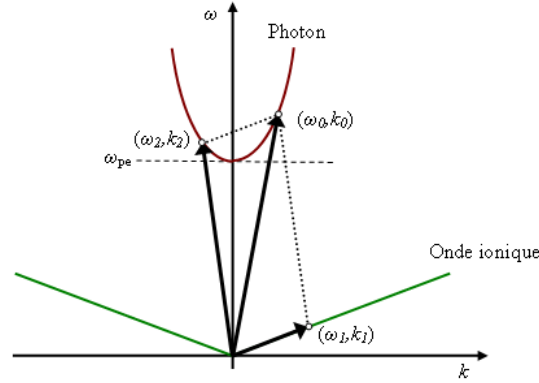


FIG. 2-5 – Diffusion Brillouin stimulée dans l'espace $\omega - k$. Le photon incident donne naissance à un photon et une onde ionique.

2.3 La relaxation de l'énergie

Ce sont les processus à travers lesquels le sous-système électronique redistribue l'énergie dans le solide. Ils sont essentiellement de trois types :

- *Les processus radiatifs* : C'est la recombinaison électrons-trous. Ces processus sont très lents comparés aux autres processus de relaxation, de l'ordre de la nanoseconde. C'est dire qu'au régime femtoseconde ces processus ne sont pas pris en compte. Ils sont très faibles dans les métaux, mais majoritaires dans les semi-conducteurs. Ils sont également faibles dans les diélectriques parce qu'écrantés par des processus plus rapides.
- *Les processus thermiques* : Ils sont essentiels dans l'ablation. L'électron cède, lors d'une collision, une fraction de son énergie au réseau sous forme de phonons ou au système électronique dans un processus de thermalisation ou d'excitation de plasmons. Ce type de processus est dominant dans les métaux, il peut être important aussi dans les diélectriques dès que les électrons acquièrent suffisamment d'énergie dans la bande de conduction. On rappellera plus bas le temps caractéristique de ce type de relaxation.
- *Les processus de piégeage* : Ils sont propres aux diélectriques. La relaxation se fait par distorsion du réseau pour stabiliser les paires électrons-trous, ce qui conduit à la formation des défauts d'irradiation.

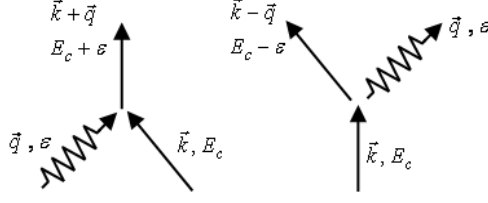


FIG. 2-6 – Absorption et émission d'un phonon. $\vec{k}$ et E sont le moment et l'énergie de l'électron, $\vec{q}$ et ε sont le vecteur d'onde et l'énergie du phonon.

2.3.1 Relaxation électrons-électrons

C'est la théorie dite « liquide de Fermi » qui est utilisée pour décrire les collisions électron-électron. C'est en fait la théorie du gaz de Fermi à laquelle on ajoute les interactions. Elle explique le fait que le libre parcours moyen d'un électron dans un métal soit aussi grand (10 Å à une dizaine de centimètres à basse température), il est attribué au principe d'exclusion de Pauli [29]. Si l'énergie cinétique de l'électron incident est suffisante pour exciter des plasmons, l'énergie dissipée par ces excitations est beaucoup plus grande que l'énergie dissipée par des collisions individuelles avec d'autres électrons [27].

2.3.2 Relaxation électron-phonon dans les métaux

C'est l'interaction des électrons avec les vibrations du réseau que l'on désigne par collision électron-phonon. Les deux processus symétriques de base sont schématisés sur la figure (2-6) : annihilation d'un électron dans l'état $\vec{k}$ et d'un phonon de vecteur d'onde $\vec{q}$ et la création d'un électron dans l'état $\vec{k} + \vec{q}$, dans un processus d'absorption ; annihilation d'un électron dans l'état $\vec{k}$ et la création d'un phonon de vecteur d'onde $\vec{q}$ et d'un électron dans l'état $\vec{k} - \vec{q}$ dans un processus d'émission.

L'écrantage de l'interaction électron-ions par les autres électrons de conduction fait que la fréquence de collisions électron-phonon dans les diélectriques est beaucoup plus grande que dans les métaux (par exemple, le temps caractéristique est de l'ordre de 10^{-15} s dans le quartz alors qu'il est de l'ordre 10^{-13} s dans les métaux).

Le temps de relaxation électron-phonon est donc, quelque soit le type du maté-

riau, de l'ordre ou inférieur à la picoseconde. Pour des impulsions nanosecondes, la relaxation est assez rapide pour dire que la température des ions suit adiabatiquement l'impulsion laser. Les deux systèmes électronique et réseau d'ions sont en équilibre thermodynamique (voir plus loin le modèle à deux températures).

2.3.3 Temps de relaxation (ou fréquence de collision)

Il est très difficile d'évaluer le temps de relaxation à cause de l'étendue de la plage de températures qui entre en jeu dans le phénomène d'ablation. Comme c'est souvent le cas en physique, les deux cas limites de faibles et fortes températures (l'état solide et l'état de plasma chaud [30]) sont assez bien connus et modélisés, reste le domaine intermédiaire entre les états solide et plasma dit matière chaude et dense "*Warm Dense Matter*", mal connu, qui est ici obtenu par interpolation des cas limites. Dans le cas des températures inférieures à la température de fusion, la fréquence de collision ne dépend pas de la température des électrons, ce sont les collisions avec les phonons qui prédominent, elle est proportionnelle à la température du réseau T_i [32].

Inversement, dans le domaine des températures supérieures à la température de Fermi, ce sont les collisions entre électrons qui prédominent et la fréquence est alors proportionnelle à $T_e^{-3/2}$. La moyenne harmonique de ces deux comportements nous permet d'avoir un modèle pour le domaine intermédiaire. La formule proposée dans la réf. [32], qui est sensée être valable dans les trois domaines, est la moyenne géométrique des fréquences de collisions électron-électron et électron-phonons :

$$\frac{1}{\nu} = \frac{1}{\nu_{e-e}} + \frac{1}{\nu_{e-ph}}. \quad (2.3)$$

A l'état solide, c'est-à-dire, pour des températures supérieures à la température de Debye et inférieures à la température de fusion⁴, la fréquence de collision est essentiellement gouvernée par les collisions des électrons avec les phonons, elle est donnée

⁴Par exemple, pour le cuivre, ces températures sont : $\Theta_D = 315$ K, $T_{fusion} = 1350$ K et $T_{Fermi} = 81600$ K. La vitesse de Fermi est $v_F = 1.57 \times 10^6$ m/s. [29].

par [32] :

$$\nu_{e-ph} = k_s \alpha_f \frac{c}{v_F} \left(2 - \frac{v_F^2}{c^2} \right) \left[1 + \left(0.13 \frac{\hbar \omega_{pi}}{k_B T_i} \right)^2 \right]^{-1/2} \frac{k_B T_i}{\hbar} \quad (2.4)$$

où k_s est une constante numérique de l'ordre de 10, $\alpha_f = 1/137.04$ est la constante de structure fine, $v_F = \hbar(3\pi^2 n_e)^{1/3}/m_e$ est la vitesse de Fermi et $\omega_{pi}^2 = n_i e^2 / \varepsilon_0 m_i$ est la fréquence plasma ionique. Pour un solide, on a $v_F \ll c$ (typiquement 0.5% de la vitesse de la lumière) et $\hbar \omega_{pi} \ll k_B T_i$, ce qui réduit la formule précédente à une forme plus simple

$$\nu_{e-ph} \approx 2k_s \alpha_f \frac{ck_B T_i}{\hbar v_F} = 1.856 \times 10^{25} \times k_s \frac{T_i}{n_e^{1/3}} \quad (\text{Hz}) \quad (2.5)$$

où T_i dans le second membre est en (eV) et la densité n_e est en (m^{-3}).

Pour des températures supérieures à la température de Fermi, la fréquence de collision est donnée par la formule de Spitzer [32, 33] :

$$\nu_{e-e} = \nu_{Spitzer} = \frac{1}{3(2\pi)^{3/2}} \frac{Z_{av} e^4 m_e n_e}{\varepsilon_0^2 (m_e k_B T_e)^{3/2}} \ln \Lambda = 2.90 \times 10^{-12} \frac{Z_{av} n_e}{T_e^{3/2}} \ln \Lambda \quad (\text{Hz}) \quad (2.6)$$

où Z_{av} est le taux d'ionisation [34], $\ln \Lambda$ est le logarithme de Coulomb avec $\Lambda = [1 + (b_{\max}/b_{\min})^2]^{1/2}$, $b_{\max} = (k_B T_e / m_e)^{1/2} / \max(\omega_{pe}, \omega)$ et $b_{\min} = \max[Z_{av} e^2 / k_B T_e, \hbar / (m_e k_B T_e)^{1/2}]$ étant les paramètres maximum et minimum de collision⁵. Dans la seconde expression de l'équation (2.6) la température est en (eV) et la densité en (m^{-3}).

Cependant, à ces formules on doit ajouter une condition. En effet, l'analyse montre que dans le domaine intermédiaire ($T_{\text{fusion}} < T_e < T_F$), la fréquence de collision donnée par la moyenne (2.3) est tellement grande que le parcours libre moyen des électrons est très inférieur à la distance moyenne interatomique. Pour éviter ce comportement non physique, on impose la condition que le parcours moyen des électrons $\lambda_e = v_e / \nu$ doit être supérieur à la distance interatomique $r_0 = (3/4\pi n_i)^{1/3}$, soit

$$\nu < \frac{v_e}{r_0}$$

où $v_e = (v_F^2 + k_B T_e / m_e)^{1/2}$ est la vitesse moyenne des électrons (Fig.2-7) [32]. En effet, la vitesse des électrons de conduction est en moyenne de l'ordre de la vitesse de Fermi

⁵L'expression de $b_{\min}$ est donnée dans le système de gauss où $e^2 = 1.440 \times 10^{-7}$ eV cm.

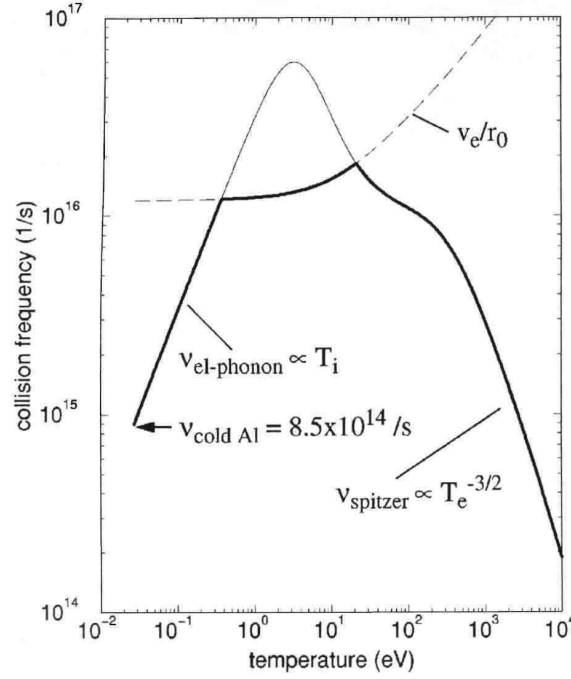


FIG. 2-7 – Fréquence de collision pour l'aluminium en fonction de la température $T_e = T_i$ (en trait gras) [32].

à laquelle on ajoute les fluctuations thermiques.

2.4 Propriétés optiques d'un solide

Le comportement macroscopique de l'interaction d'un rayonnement électromagnétique avec la matière, ou les propriétés optiques d'un matériau, est déterminé par un petit nombre de paramètres, qui ont l'avantage d'être accessibles par l'expérience. Ils sont au nombre de quatre [25] :

Le coefficient de réflexion R : c'est le rapport de la puissance réfléchie à la puissance incidente.

Le coefficient de transmission T : c'est le rapport de la puissance transmise à la puissance incidente.

L'indice de réfraction n : c'est le rapport de la célérité v de l'onde à l'intérieur du matériau à la célérité de la lumière dans le vide c ; il est en fait une fonction de la

fréquence f de la radiation (dispersion) :

$$n(f) = \frac{c}{v(f)}.$$

Le coefficient d'absorption α : c'est le rapport entre la puissance absorbée par unité de longueur et la puissance incidente, la puissance absorbée est :

$$dI(z) = -\alpha I(z) dz$$

qui conduit à la loi de Beer dans le cas où α ne dépend pas de z :

$$I(z) = I_0 \exp(-\alpha z).$$

Le coefficient d'absorption dépend très fortement de la fréquence de la radiation.

Ces propriétés optiques peuvent être déterminées par une seule quantité complexe liée au milieu et à la fréquence du rayonnement. On définit alors l'indice de réfraction complexe $\tilde{n}$ et la "constante" diélectrique relative complexe ε_r par :

$$\varepsilon_r = \tilde{n}^2 = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2 \quad (2.7)$$

avec :

$$\tilde{n} = n + i\kappa,$$

où n est l'indice de réfraction et κ le coefficient d'extinction donnés par [25] :

$$n = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\varepsilon_1 + \sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2} \right)^{1/2} \quad (2.8)$$

$$\kappa = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(-\varepsilon_1 + \sqrt{\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2} \right)^{1/2}. \quad (2.9)$$

Les coefficients de réflexion⁶ et d'absorption s'écrivent alors :

$$R = \frac{(n-1)^2 + \kappa^2}{(n+1)^2 + \kappa^2} \quad (2.10)$$

$$\alpha = \frac{2\omega\kappa}{c} \quad (2.11)$$

où ω est la fréquence de l'onde incidente. Deux types de contributions sont dominants dans le domaine des fréquences qui nous intéresse : la contribution des électrons libres décrite par le modèle de Drude et celle des électrons liés décrite par le modèle de Lorentz.

2.5 Modèle de Drude-Lorentz

De prime abord, on pourrait supposer que le modèle de Drude, qui décrit le mouvement collectif des électrons libres, peut rendre compte des propriétés optiques des métaux, et celui de Lorentz celles des diélectriques et des semiconducteurs. En fait, la réalité est bien plus complexe. En effet, le modèle de Drude ne décrit que la contribution intrabande de la bande de conduction et néglige la contribution interbande. Pour les diélectriques, le modèle de Lorentz n'est pas suffisant car il faut prendre en compte également la contribution minoritaire, mais non négligeable, des électrons libres qui, eux relèvent du modèle de Drude.

Rappelons brièvement la base de l'étude de l'interaction d'un rayonnement électromagnétique avec la matière : les équations de Maxwell. Dans un milieu isotrope, la forme différentielle de ces équations est : [31] :

$$\left. \begin{array}{l} \text{rot } \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \\ \text{div } \vec{D} = \rho \end{array} \right| \begin{array}{l} \text{rot } \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{J} \\ \text{div } \vec{B} = 0 \end{array} \quad (2.12)$$

où les champs de vecteurs sont (les unités sont données dans le système SI) :

$\vec{D}$: le déplacement électrique ou induction électrique (C m^{-2});

$\vec{E}$: le champ électrique (V m^{-1});

⁶Cette expression du coefficient de réflexion est valable dans le cas où le premier milieu est le vide (ou l'air) et à incidence normale.

$\vec{B}$: l'induction magnétique (ou densité de flux) (Wb m⁻² ou Tesla) ;

$\vec{H}$: le champ magnétique (A m⁻¹) ;

et les sources :

$\vec{J}$: densité de courant électrique (A m⁻²) ;

ρ : densité volumique de charge électrique (C m⁻³).

L'influence de la matière est prise en compte avec les équations constitutives :

$$\vec{B} = \mu_0 \mu_r \vec{H} \quad (2.13)$$

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \varepsilon_r \vec{E} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P} = \varepsilon_0 (1 + \chi^{(1)}) \vec{E} \quad (2.14)$$

$$\vec{J} = \vec{J}_{source} + \sigma \vec{E} \quad (2.15)$$

où

$\vec{P} = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}$ est le vecteur polarisation (C m⁻²)

μ_0 et μ_r sont les perméabilités magnétiques du vide et relative du milieu, $\mu_0 = 1.257 \times 10^{-6}$ H m⁻¹ et, pour un matériau non-magnétique, $\mu_r = 1$;

ε_0 et ε_r sont les permittivités électriques du vide et relative du milieu, $\varepsilon_0 = 8.854 \times 10^{-12}$ F m⁻¹ ;

$\chi^{(1)}$ est la susceptibilité électrique linéaire (sans dimension) ;

et $\sigma(\omega)$ est la conductivité électrique (unité S m⁻¹) du milieu (dite AC pour ne pas confondre avec la conductivité DC σ_0 à champ constant)

La constante diélectrique $\varepsilon = \varepsilon_0 \varepsilon_r$ et la perméabilité magnétique $\mu = \mu_0 \mu_r$ sont généralement des fonctions complexes de la fréquence.

Dans le modèle de Drude-Lorentz, le milieu est représenté par une collection d'oscillateurs harmoniques amortis. Soumis à un champ électrique oscillant, l'équation du mouvement d'un électron est⁷ [25] :

$$\frac{d^2 \vec{r}}{dt^2} + \gamma \frac{d \vec{r}}{dt} + \omega_0^2 \vec{r} = -\frac{e}{m_e} \vec{E}(t) \quad (2.16)$$

où γ est un coefficient d'amortissement et ω_0 est la pulsation propre de l'oscillateur (ou sa fréquence de résonance). Le champ électrique de pulsation ω peut être écrit sous la

⁷L'origine est à la position d'équilibre.

forme :

$$\vec{E}(t) = \vec{E}_0 e^{-i\omega t}$$

où l'amplitude $\vec{E}_0$ est complexe. La solution de l'équation (2.16) peut être aussi écrite sous la forme :

$$\vec{r}(t) = \vec{R}_0 e^{-i\omega t}$$

où, là aussi, l'amplitude $\vec{R}_0$ est complexe. L'équation (2.16) donne alors :

$$\vec{r}(t) = -\frac{e}{m_e} \frac{\vec{E}(t)}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega}.$$

En supposant que tous les électrons répondent de la même manière à la même excitation, la polarisation totale, qui est la somme des moments dipolaires par unité de volume, est donnée par :

$$\vec{P}(t) = -ne\vec{r}(t)$$

où n est la densité d'électrons. La comparaison avec la définition de $\vec{P}$ donne la susceptibilité :

$$\chi^{(1)} = \frac{ne^2}{\varepsilon_0 m_e} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega}.$$

Les parties réelle et imaginaire de la permittivité relative généralisées à plusieurs oscillateurs sont (d'après la relation de définition (2.14)) :

$$\varepsilon_1 = 1 + \sum_i \omega_{pi}^2 \frac{\omega_{0i}^2 - \omega^2}{(\omega_{0i}^2 - \omega^2)^2 + \gamma_i^2 \omega^2} \quad (2.17)$$

$$\varepsilon_2 = \sum_i \omega_{pi}^2 \frac{\gamma_i \omega}{(\omega_{0i}^2 - \omega^2)^2 + \gamma_i^2 \omega^2} \quad (2.18)$$

où ω_{0i} est la pulsation propre de l'oscillateur i , $\omega_{pi}^2 = \frac{n_i e^2}{\varepsilon_0 m_e}$ est la "fréquence plasma" associée à l'oscillateur i et n_i est sa densité⁸.

Le métal est considéré dans le modèle de Drude comme un réseau d'ions immobiles

⁸Dans la pratique, les paramètres ω_0 , γ et ω_p sont ajustés de manière à retrouver les courbes expérimentales. ω_p caractérise dans ce cas le nombre d'états qui contribuent à la résonance et γ est relié à la distribution des niveaux d'énergies au voisinage de la résonance. Le succès de ce modèle n'est plus à démontrer.

baignant dans un nuage d'électrons libres qui peuvent osciller collectivement sous l'influence d'un champ électromagnétique. L'équation du mouvement d'un électron libre est analogue à l'équation (2.16) avec $\omega_0 = 0$. Le terme de friction est maintenant dû aux collisions avec les impuretés, les phonons,...etc. La permittivité de Drude est déduite des expressions (2.17) et (2.18) en posant $\omega_{0i} = 0$ (on ne prend qu'un seul terme, puisque les électrons sont libres) [25] :

$$\varepsilon_r(\omega) = 1 - \frac{\omega_{pe}^2}{\omega^2 + i\frac{\omega}{\tau}} \quad (2.19)$$

$$= \varepsilon_\infty + i\frac{\sigma(\omega)}{\varepsilon_0\omega} \quad (2.20)$$

où on définit la fréquence plasma électronique par l'expression :

$$\omega_{pe} = \sqrt{\frac{n_e e^2}{\varepsilon_0 m_e}}, \quad (2.21)$$

n_e étant la densité des électrons libres et $\tau = \gamma^{-1}$ est le temps caractéristique de relaxation. Cette expression de la constante diélectrique est valable pour les plasmas et les métaux tant qu'il n'y a pas de résonance due à une absorption interbande. [32]

Une analyse des cas possibles⁹ montre que l'on se trouve devant trois cas de figure concernant la pénétration d'un solide par un champ électromagnétique :

- $\omega < \omega_p$ (ou $n_e > n_{cr}$) : le champ ne se propage pas dans le métal mise à part une onde évanescente sur quelques nanomètres. Le métal est pratiquement totalement réfléchissant.
- $\omega = \omega_p$ (ou $n_e = n_{cr}$) : excitation résonante, le champ est résonant avec les oscillations plasma.
- $\omega > \omega_p$ (ou $n_e < n_{cr}$) : le champ se propage dans le métal, mais il est rapidement amorti par les phénomènes d'absorption.

Cependant, la situation n'est pas aussi tranchée. En effet, le temps de relaxation peut modifier considérablement ces comportements.

⁹L'analyse peut se faire, par exemple, en étudiant le comportement du coefficient de réflexion R en fonction de la densité n_e et τ .

2.6 Mécanismes de formation des stries

En plus de l'intérêt pratique de l'étude expérimentale des LIPSS, notamment pour les semi-conducteurs, l'intérêt théorique n'est pas moins important, bien que le nombre de publications qui traite du mécanisme de formation de ces structures soit relativement réduit. Birnbaum en 1965 a été le premier à proposer un mécanisme de formation de cette structuration en l'attribuant au phénomène de diffraction des lentilles de focalisation [5]. En fait, à notre connaissance, les seuls travaux qui traitent des mécanismes de formation des stries et qui les confrontent à l'expérience sont ceux de Sipe et *al* en 1982, qui donnent une formulation du mécanisme d'interférence proposé par Emmony en 1973 [7, 13]; ceux de Bonse et *al* en 2005 qui ont repris la même même idée en introduisant des effets non linéaires [15, 17]; et enfin, ceux de Sakabe et *al* qui en 2009 ont proposé un mécanisme basé sur l'explosion coulombienne et la diffusion Raman stimulée [8, 50].

2.6.1 Mécanisme d'interférence

La théorie selon laquelle la formation des stries est due à l'interférence de l'onde incidente avec une onde diffusée de surface est proposée pour la première fois par Emmony et *al* [13], puis reprise par des auteurs sans en donner une formulation précise de la nature de cette onde. C'est Sipe et *al* qui lui donnèrent un cadre physique très rigoureux en précisant que cette onde de surface ne peut être simplement une onde plane longitudinale qui se propage parallèlement à l'interface, puisque une telle onde ne peut satisfaire les équations de Maxwell. Ce paragraphe donne un aperçu de ce mécanisme. Le lecteur intéressé par le développement mathématique peut consulter la référence [7].

La surface du solide est supposée parsemée de rugosités aléatoires de dimensions très inférieures à la longueur d'onde du laser (Fig. 2-8). La décomposition en série de Fourier du profil de la surface et la résolution des équations de Maxwell dans la lisière et le volume de la cible montrent que des champs électromagnétiques non radiatifs, dits rémanents, sont produits par chaque composante de Fourier de vecteur d'onde $\vec{k}$ dont les vecteurs d'onde sont $\vec{k}_i \pm \vec{k}$, $\vec{k}_i$ étant la projection du vecteur d'onde $\vec{k}_L$ de l'onde

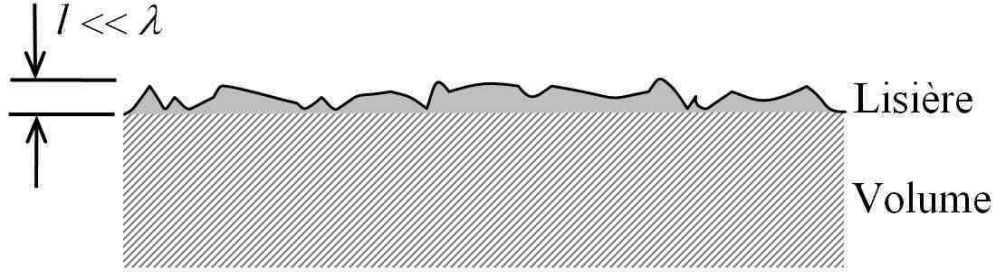


FIG. 2-8 – La surface du solide est considérée comme une lisière d’une petite épaisseur rugueuse qui couvre le volume (*bulk*).

incidente sur la surface, et qui ont une intensité sur la surface proportionnelle à :

$$\eta(\vec{k}, \vec{k}_i) \times |b(\vec{k})| \quad (2.22)$$

où $b(\vec{k})$ est une fonction qui caractérise la forme de la rugosité et $\eta(\vec{k}, \vec{k}_i)$ désigne une fonction qui décrit l’efficacité avec laquelle la composante $\vec{k}$ induit une absorption inhomogène de l’énergie juste au-dessous de la lisière. Sipe et *al* montrent que cette fonction présente des pics dans les cas suivants :

$$\|\vec{k}_i \pm \vec{k}\| = \begin{cases} k_L = \frac{2\pi}{\lambda} & \text{si } |\varepsilon| \gg 1 \\ nk_L & \text{si } n \approx 1 \end{cases} . \quad (2.23)$$

Le premier cas correspond aux métaux, semi-conducteurs et les diélectriques de haut indice de réfraction alors que le second cas correspond aux verres et plastiques transparents.

Ces ondes, solutions des équations de Maxwell, peuvent être diffusées dans trois directions :

- deux parallèlement au plan d’incidence, elles donnent naissance aux stries, dites de type S_+ et S_- , perpendiculaires à la polarisation et de période spatiale :

$$\Lambda_{\pm} = \frac{\lambda/n}{1 \pm \sin \theta}, \quad (2.24)$$

où n est l’indice de réfraction du solide ;

- une onde perpendiculaire au plan d’incidence qui donne naissance aux stries, dites de type C, qui sont parallèles à la polarisation et de période spatiale :

$$\Lambda_c = \frac{\lambda/n}{\cos \theta}, \quad (2.25)$$

où θ et λ sont respectivement l’angle d’incidence et la longueur d’onde du laser. Le type C n’apparaît que dans le cas de polarisation parallèle au plan d’incidence (polarisation p) et à des angles d’incidence élevés [6].

A incidence normale ($\theta = 0$), on constate donc que la période des stries est égale à la longueur d’onde dans les trois cas.

Cette théorie et les expressions qui en découlent rendent compte de façon satisfaisante les observations expérimentales dans le domaine des impulsions nanosecondes et plus. Cependant, l’ablation femtoseconde a montré des comportements différents des stries notamment la période spatiale qui peut être inférieure à la longueur d’onde et l’existence de deux types de stries LSFL et HSFL. Cette théorie n’est pas en mesure de reproduire l’expérience. Bonse et *al* ont étendu cette théorie en incluant les effets non linéaires que sont l’effet Kerr et la génération du seconde harmonique. L’indice de réfraction complexe est corrigé en y ajoutant la contribution de la génération multiphotonique de porteurs de charge dans la bande de conduction $\Delta\varepsilon_{Drude}$ et la contribution de l’effet Kerr due à l’intensité $\Delta\varepsilon_{Kerr}$:

$$n = \sqrt{\varepsilon + \Delta\varepsilon_{Drude} + \Delta\varepsilon_{Kerr}},$$

ce qui a pour conséquence d’induire, pour la période spatiale des stries, une dépendance par rapport à l’intensité du laser. De plus, les auteurs suggèrent d’appliquer la même théorie à la deuxième harmonique pour rendre compte de la formation des HSFL [9,17].

2.6.2 Mécanisme coulombien et de diffusion paramétrique

Certain auteurs, dont Sakabe et *al* [50], réfutent la théorie de l’interférence optique du fait que la période spatiale est très petite devant la longueur d’onde. A la place, ils proposent le mécanisme suivant : les ondes de surface produites par le laser induisent

des régions de nuage d'ions, qui sous l'action de la répulsion coulombienne, explosent. Une fine couche ablatée par le premier pulse laisse une surface qui a pris la forme d'ondulation. Les pulses suivants ont tendance à accentuer la profondeur de ces structures. La période spatiale des stries résultantes n'est autre que la longueur d'onde de ces plasmons de surface.

Rappelons que le plasmon, onde longitudinale de densité d'électrons quantifiée d'énergie de l'ordre de 10 eV (UV), ne peut être excité par une onde électromagnétique visible ou infrarouge. Cependant, le cas particulier de plasmon de surface, onde électronique sur une interface métal-diélectrique, présente des énergies de quelques eV (2.5 eV pour une interface Or-vide par exemple) ce qui les rend excitables par la lumière visible. La relation de dispersion des plasmons en volume est $\omega^2 = \omega_p^2 + c^2 k^2$ (fig.2-4) alors que pour les plasmons de surface elle s'écrit :

$$ck_{sp} = \omega_{sp} \sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}} \quad (2.26)$$

où ε_1 et ε_2 sont les permittivités des deux milieux. Cette relation est déduite de la résolution des équations de Maxwell sur l'interface métal-diélectrique, la solution étant une onde se propageant sur l'interface et évanescence dans les directions normales. Dans le cas d'une interface plasma-vide, $\varepsilon_1 = 1 - \omega_p^2/\omega_{sp}^2$ et $\varepsilon_2 = 1$, la relation 2.26 s'écrit :

$$\omega_{sp}^2 = c^2 k_{sp}^2 + \frac{1}{2} \omega_p^2 - \sqrt{c^4 k_{sp}^4 + \frac{1}{4} \omega_p^4}. \quad (2.27)$$

Le mécanisme par lequel l'onde électromagnétique incidente excite des plasmons de surface est la diffusion Raman stimulée (voir paragraphe 2.2.3). Le digramme de cette diffusion est donné sur la figure (2-9).

La combinaison de cette relation de dispersion avec les équations de conservation (2.2) déduite de cette figure, permet de tracer la période spatiale Λ des stries en fonction de l'inverse de la pulsation laser (Fig. 2-10). On constate que Λ varie entre $0.5\lambda_L$ et $0.85\lambda_L$. Cette limite supérieure est due à la condition de diffusion $\omega_L > \omega_p/\sqrt{2}$. Expérimentalement, ces résultats concordent avec les mesures uniquement pour des fluences légèrement supérieures à la fluence seuil d'ablation. Au dessous de cette fluence,

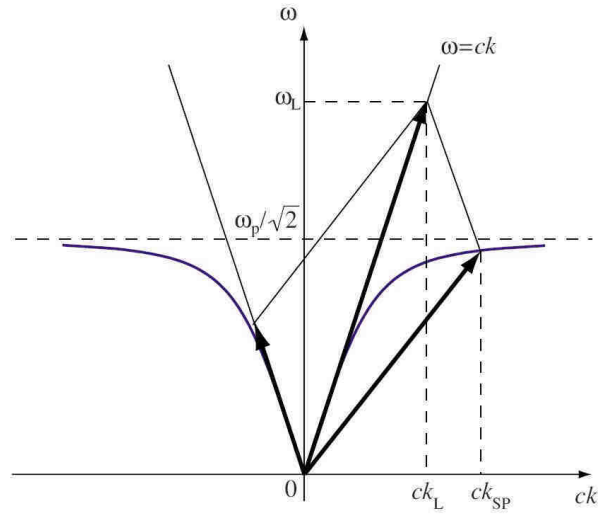


FIG. 2-9 – Le photon incident produit un plasmon de surface (relation de dispersion 2.27) et un autre photon. Une telle diffusion n'est possible qu'à la condition $\omega_L > \omega_p/\sqrt{2}$.

on mesure des espacements inférieurs à $0.5\lambda_L$ (Fig.2-11).

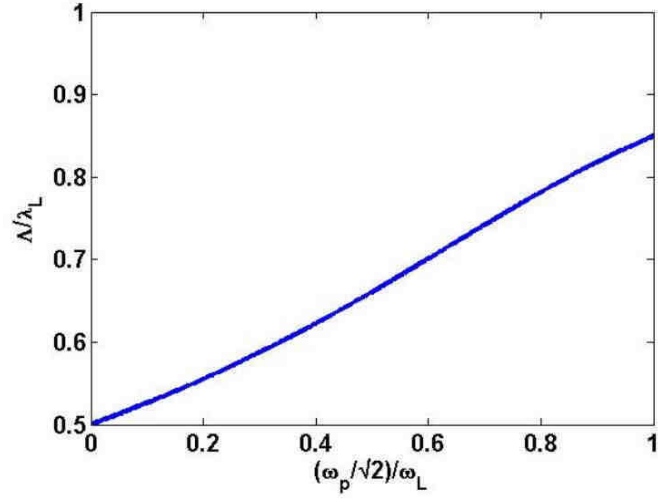


FIG. 2-10 – Période spatiale déduite du processus de diffusion Raman stimulé de plasmon de surface.

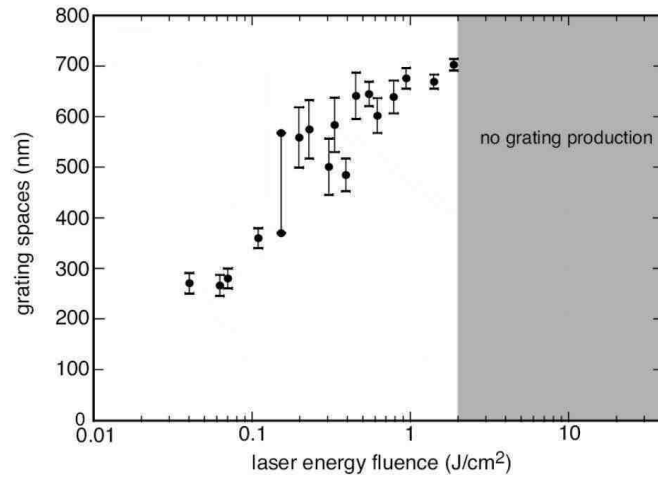


FIG. 2-11 – Période en fonction de la fluence du laser (800 nm) tiré de la réf. [50]. La fluence seuil du cuivre est de 0.18 J cm^{-2} .

Chapitre 3

Modèles de simulation de l'interaction Laser-matière

3.1 Introduction

L'interaction d'un rayonnement électromagnétique avec de la matière (solide ou plasma) constitue un domaine à part entière de la physique. Les processus mis en jeu sont complexes et variés. Il est extrêmement difficile de les inclure dans une simulation numérique. Aussi des modèles sont proposés pour étudier tel ou tel aspect de cette interaction.

Dans ce chapitre on exposera en premier le modèle à deux températures, pour décrire numériquement la diffusion thermique dans un métal après application d'un rayonnement laser femtoseconde de fluence relativement faible. Dans la deuxième partie, nous exposerons le modèle hydrodynamique qui inclut l'éjection et l'expansion du plasma éjecté.

Le modèle à deux températures¹ est macroscopique, on y considère le métal comme l'association de deux systèmes thermodynamiques à l'équilibre interne : le réseau cristallin et le nuage d'électrons libres. On l'utilise dans le cas de faible fluence de manière à ne pas avoir d'éjection de plasma. En effet, la distribution de Fermi-Dirac à

¹Introduit pour la première fois par Kaganov en 1957. Repris ensuite par Anisimov pour l'appliquer à l'interaction d'impulsions ultra-brèves avec les métaux. Voir M. I. Kaganov, I. M. Lifshits, et L. V. Tanatarov. Zh. Eksp. Teor. Fiz., 31(232), (1956) [Sov. Phys. -JETP 4, 173 (1957)] et S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, et T. L. Perel'man. Zh. Eksp. Teor. Fiz., 66(776), (1974). [38]

laquelle satisfait le gaz d'électrons de conduction d'un métal, permet de lui associer une température qui peut être différente de la température du solide. Aux premiers instants de l'absorption du rayonnement, le gaz est fortement hors équilibre. Ce n'est qu'après la relaxation (des électrons entre eux) que l'on retrouve un gaz en équilibre thermodynamique. Cette thermalisation se fait par un processus thermique : collision electron-electron (voir le paragraphe sur la relaxation dans le chapitre III). Après cette thermalisation, la relaxation électron-phonon intervient, le matériau est ainsi chauffé [38].

Au delà d'une certaine fluence, dite d'ablation, la densité d'énergie du laser est suffisante pour rompre les liaisons atomiques et créer un gradient de pression qui induit une éjection rapide, voir explosive, d'un plasma constitué d'électrons, d'ions et de particules neutres. C'est là la différence fondamentale avec l'ablation en régime nanoseconde où l'expansion résulte d'une évaporation thermique.

L'ablation femtoseconde peut être décomposée en quatre étapes :

- l'absorption de l'énergie : c'est le processus d'absorption-relaxation ;
- éjection de la matière : une onde de choc se propage dans le solide suivie d'une détente qui éjecte violemment la matière ; cette phase dure, en fonction de la fluence, d'environ 20 à 100 ps ;
- expansion initiale à une dimension : cette phase peut durer jusqu'à 100 ns ;
- expansion 3D : c'est la phase finale où le plasma s'étend en 3D, cela dure plusieurs microsecondes.

Nous présenterons ici un modèle hydrodynamique qui inclut les trois premières phases de l'ablation en considérant le plasma créé par le laser comme un fluide en expansion. La quatrième étape, l'expansion 3D², exige une autre modélisation.

Dans la dernière partie de ce chapitre, nous présenterons les bases théoriques de la méthode particulière PIC qui représente une alternative aux deux modèles précédents.

²Ou plus simplement 2D en supposant une symétrie de révolution.

3.2 Modèle à deux températures

Le modèle à deux températures est basé sur un modèle classique de diffusion de chaleur à l'intérieur du métal [35]. La réponse des électrons au champ électromagnétique étant plus rapide que la relaxation de l'énergie absorbée vers le réseau dans le régime femtoseconde, il est possible de considérer les électrons libres comme un système thermodynamique indépendant qui accumule l'énergie du laser pour ensuite la redistribuer au réseau, lui même considéré comme un sous système thermodynamique. Les équations de transport de la chaleur sont alors :

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla \cdot (K_e \nabla T_e) - g \times (T_e - T_i) + Q(\vec{r}, t, T_e, T_i) \quad (3.1)$$

$$C_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = \nabla \cdot (K_i \nabla T_i) + g \times (T_e - T_i) \quad (3.2)$$

où $C_{e,i}(T_e, T_i)$ sont les chaleurs spécifiques, $K_{e,i}(T_e, T_i)$ les conductivités thermiques et $g(T_e, T_i)$ la constante de couplage.

La source d'énergie, exprimée par le terme Q , ne concerne que le sous système électronique, elle s'écrit :

$$Q = -\frac{\partial I(t, z)}{\partial z} = \alpha I(t, z) \quad (3.3)$$

où $I(t, z) = (1 - R)I_0(t) e^{-\alpha z}$ est l'intensité du laser, $I_0(t)$ étant la forme temporelle du pulse que l'on prend généralement comme une gaussienne, α est le coefficient d'absorption et R le coefficient de réflexion.

Ces deux équations ne sont solubles analytiquement que dans certains cas limites très restreints [36]. On a alors recours à la résolution numérique. Cependant, ce modèle nous permet de retrouver le comportement logarithmique du taux d'ablation et même de nous donner une première approximation de la fluence seuil [36].

Pour améliorer la modélisation, on doit prendre en compte la dépendance des propriétés des métaux par rapport à la température et les caractéristiques du laser. Malheureusement, du fait de la très large étendue de la plage des températures, il n'existe pas de formules simples qui englobent tous les domaines de températures. En fait, nous n'avons des formules que pour les solides et les plasmas chauds.

La chaleur spécifique électronique est donnée par le modèle de Sommerfeld [37] :

$$C_e = \frac{\pi^2}{2} n_e k_B \frac{T_e}{T_F} = C'_e T_e \quad (3.4)$$

où T_F est la température de Fermi du métal et n_e la densité électronique. Le coefficient C'_e dépend du métal, les valeurs trouvées dans la littérature sont résumées dans le tableau ci-dessous.

Les valeurs expérimentales de la chaleur spécifique du réseau d'ions sont aussi données dans le tableau 1 [38].

Métal	C'_e (J m ⁻³ K ⁻²)	C_i (10 ⁶ J m ⁻³ K ⁻¹)	K_{e0} (W m ⁻¹ K ⁻¹)	g (10 ¹⁶ W m ⁻³ K ⁻¹)
Au	71	2.5	318	2.1
Cu	97	3.46	401	10
Ni	1065	4.1	91	36
Al	135	2.43	238	56.9

Tab. 1 : Données expérimentales des propriétés des systèmes
électronique et ionique des métaux [38].

La conductivité thermique électronique découle de la théorie cinétique des gaz appliquée au gaz d'électrons, elle est exprimée par l'expression :

$$K_e = \frac{\pi^2}{3} \frac{n_e k_B T_e}{m_e \nu} \quad (3.5)$$

où la fréquence de collision ν est donnée par la moyenne harmonique (2.3). Lorsque le gaz d'électrons est thermalisé, les collisions électrons-phonons deviennent prépondérantes, la fréquence de collision ν est réduite à la fréquence de collision ν_{e-ph} , qui est proportionnelle à $k_B T_i / \hbar$ dans le cas de températures supérieures à la température de Debye. On a alors :

$$K_e = K_{e0} \frac{T_e}{T_i} \quad (3.6)$$

où K_{e0} est la conductivité thermique lorsque les deux systèmes (électrons et réseau) sont en équilibre thermodynamique. Les valeurs expérimentales pour certains métaux

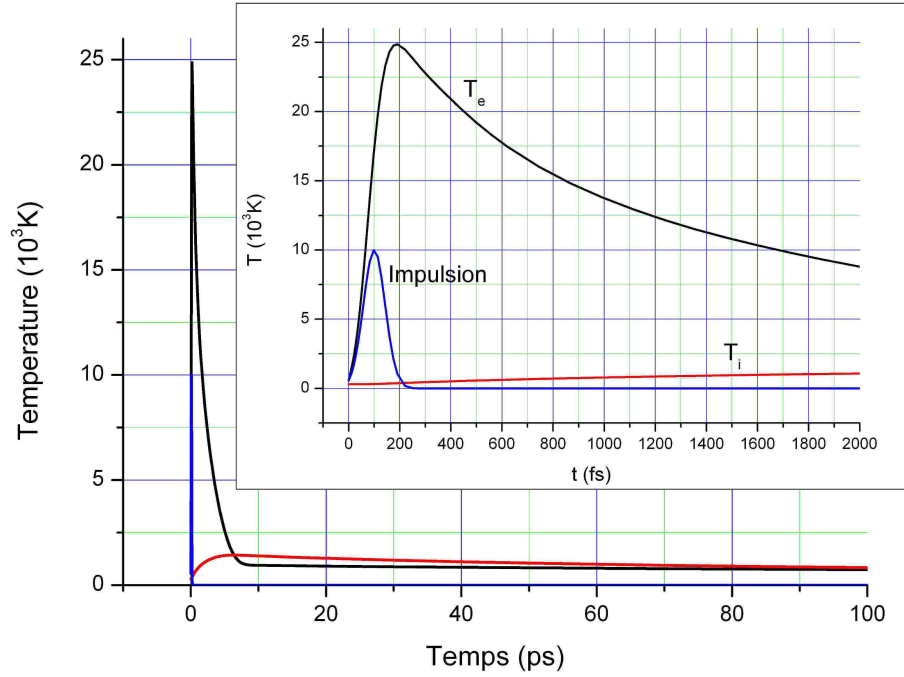


FIG. 3-1 – Evolution des températures électronique T_e et ionique T_i en fonction du temps obtenue par le modèle à deux températures.

sont données dans le tableau 1.

La conductivité thermique ionique est quant à elle négligeable devant celle des électrons : $K_i \ll K_e$ [39]. De ce fait, on ne prend généralement pas en compte le terme de diffusion ionique dans l'équation (3.2).

La constante de couplage g caractérise l'échange d'énergie entre les systèmes électronique et ionique sous forme d'interaction électrons-phonons. Elle dépend à priori des températures $T_{e,i}(\vec{r}, t)$, cependant, il a été montré qu'elle ne dépend plus de la température au-delà de la température de Debye [39]. D'où le terme "constante" de couplage. Les valeurs de g obtenues par la comparaison des températures de fusion mesurées expérimentalement et celles obtenues par ce modèle sont résumées dans le tableau 1.

Finalement, on utilise les équations (2.11) et (2.10) pour calculer les coefficients d'absorption et de réflexion dans le terme source.

Le calcul à deux dimensions appliqué au cuivre avec une impulsion à 100 fs et à une fluence de 0.08 J cm^{-2} , nous donne les courbes de la figure (3-1) qui sont caractéristiques

du régime femtoseconde. La température du gaz d'électrons atteint son maximum, qui est ici de 25000 K après le passage de plus de trois-quarts de l'impulsion (ici ~ 180 fs), alors que le maximum de la température du réseau (1400 K) n'est atteint qu'après 8 ps environ. L'équilibre entre les deux systèmes s'établit après 100 ps. La zone affectée par la température s'étend sur une profondeur d'environ 300 nm.

3.3 Modèle hydrodynamique

Dans le modèle à deux températures, on a considéré deux sous-systèmes thermodynamiques indépendants, les électrons et les ions, soumis à une densité d'énergie suffisamment faible pour ne pas causer une éjection de matière. Si on augmente maintenant la fluence du laser au delà du seuil d'ablation, la densité d'énergie sera suffisante pour briser les liaisons atomiques et provoquer ainsi une émission d'un panache d'électrons, d'ions et d'agrégats neutres. L'éjection puis l'expansion de ce plasma peuvent être modélisées par les équations hydrodynamiques d'un fluide en mouvement [40, 42]. Les deux premières équations de ce modèle expriment la conservation de l'énergie pour chaque sous-système :

$$\left(\frac{\partial U_{e,i}}{\partial T_{e,i}} \right)_\rho \frac{dT_{e,i}}{dt} + \left[\left(\frac{\partial U_{e,i}}{\partial \rho} \right)_{T_{e,i}} - \frac{p_{e,i}}{\rho^2} \right] \frac{d\rho}{dt} = S_{e,i} \quad (3.7)$$

où $U_{e,i} = U_{e,i}(\rho, T_{e,i})$, $p_{e,i} = p_{e,i}(\rho, T_{e,i})$ sont, respectivement, les énergies internes et les pressions des deux sous-systèmes électronique et ionique, ρ étant la densité de masse du plasma. Les termes sources qui décrivent les échanges d'énergie sont donnés par :

$$S_e = H_e + K + X \quad (3.8)$$

$$S_i = H_i - K + Q \quad (3.9)$$

où les contributions sont :

– *Flux de chaleur* dû à la conductivité thermique :

$$H_{e,i} = \rho^{-1} \frac{\partial}{\partial z} K_{e,i} \frac{\partial}{\partial z} T_{e,i}$$

- *Taux d'échange d'énergie* entre les sous-systèmes dû aux collisions électron-ions :

$$K = \rho^{-1} g(T_i - T_e)$$

- *Taux d'absorption du laser* par les électrons :

$$X = \frac{1}{2} \text{Re}(\sigma) |E|^2$$

qui est obtenu en résolvant numériquement l'équation d'onde de Helmholtz :

$$\frac{d^2 E}{dz^2} + k_L^2 (\varepsilon - \sin^2 \theta) E = 0 \quad (3.10)$$

où E est le champ électrique, k_L le module du vecteur d'onde du laser et θ l'angle d'incidence. $\varepsilon(\omega_L)$ est la fonction complexe diélectrique et $\sigma(\omega_L)$ la conductivité électrique 2.19 ;

- *Echauffement dû à la viscosité* :

$$Q = \frac{q}{\rho^2} \frac{d\rho}{dt}.$$

Cette liste n'est pas exhaustive, des raffinements dans le terme source peuvent être pris en compte comme les pertes radiatives.

Pour conserver la neutralité locale du plasma, les deux systèmes doivent avoir la même vitesse d'expansion u , ceci se traduit par une équation de mouvement unique pour le plasma :

$$\rho \frac{du}{dt} = -\nabla(p + q) \quad (3.11)$$

où la pression hydrodynamique est définie par $p = p_e + p_i$ et q est la viscosité artificielle de Von Neumann³.

A ces équations on doit ajouter les équations d'état qui nous donneront la pression et l'énergie interne en fonction de la densité et de la température.

³Ce terme de viscosité artificielle est ajouté pour amortir les oscillations numériques indésirables.

3.3.1 Equation d'état de la matière chaude et dense

L'une des équations les plus utilisées est celle dite Quotidian Equation Of State (QEOS) [41]. Elle a l'avantage de ne pas présenter de discontinuité, ce qui est très pratique en calcul numérique, et de traiter séparément les électrons et les ions. On suppose, en premier lieu que les valeurs des propriétés physiques de la matière sont la somme de celles des sous-systèmes. Ainsi l'énergie libre de Helmholtz totale est donnée par :

$$F(\rho, T_e, T_i) = F_i(\rho, T_i) + F_e(\rho, T_e) + F_b(\rho, T_e)$$

où F_i et F_e sont les énergies libres des ions et des électrons et F_b est une correction semi-empirique due aux effets des liaisons chimiques. Les propriétés thermodynamiques : pression p , énergie interne U et entropie S s'écrivent en fonction de F . Des codes qui mettent en œuvre la QEOS sont disponibles gratuitement.

Equation d'état des ions de Cowan

Le modèle de Cowan des ions est basé sur une partie structurelle qui formule toutes les propriétés thermodynamiques en fonction de la température de fusion T_m et de la température de Debye Θ_D et une seconde partie empirique qui tente de prédire T_m et Θ_D en fonction de la densité ρ . L'énergie libre est mise sous la forme :

$$F_i = \frac{k_B T_i}{m_i} f_T(u, w)$$

où m_i est la masse des ions, $u = \Theta_D/T_i$ et $w = T_m/T_i$. La fonction $f_T(u, w)$ dépend du domaine de température [41].

Equation d'état des électrons

Elle se base sur la théorie de Thomas-Fermi des plasmas chauds et denses. L'ion est considéré localement comme une sphère de rayon $R_0 = (3/4\pi n_i)^{1/3}$ au centre de laquelle se concentre la charge ionique baignée dans un fluide chargé d'électrons libres et liés,

le tout étant électriquement neutre. La théorie donne l'énergie libre des électrons :

$$F_e = \frac{1}{m_i} (Z\mu - \frac{2}{3}E_c - U_{ee})$$

où E_c est l'énergie cinétique par atome, U_{ee} l'énergie électrostatique électrons-électrons, Z la charge atomique et μ le potentiel chimique [41].

3.3.2 Modèle de conductivité électronique dans les plasmas chauds et denses

Pour calculer les coefficients de transport du plasma, on a recours à la théorie de Boltzmann. La distribution des électrons $f(\mathbf{r}, \mathbf{v}, t)$ est donnée par l'équation de Boltzmann :

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \vec{v} \cdot \frac{\partial f}{\partial \vec{r}} - \frac{e}{m} (\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}) \cdot \frac{\partial f}{\partial \vec{v}} = \frac{\partial f}{\partial t} |_{coll} \quad (3.12)$$

où $\vec{E}$ et $\vec{B}$ sont les champs électrique et magnétique (dans notre cas le champ magnétique est négligé). Le second membre est un terme dû aux diffusions électron-ion et électron-neutre, la diffusion électron-électron étant raisonnablement négligée (voir plus haut). Dans l'approximation du temps de relaxation (ou encore modèle de Krook), ce terme de collisions s'écrit [43] :

$$\frac{\partial f}{\partial t} |_{coll} = -\frac{f - f_0}{\tau}$$

où $f_0(T_e, n_e)$ est la distribution d'équilibre de Fermi-Dirac et τ le temps de relaxation des électrons (calculé par l'équation -2.3- à laquelle on ajoute la fréquence de collisions électron-neutre ν_{en}).

Au premier ordre, la distribution des électrons est :

$$f = f_0 - \tau_c \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} \vec{v} \cdot \left(-e\vec{E} + \frac{\varepsilon - \mu}{T_e} \vec{\nabla} T_e \right) \quad (3.13)$$

où $\varepsilon = \frac{1}{2}mv^2$ et μ le potentiel chimique. La théorie de Boltzmann donne alors, moyen-

nant la distribution (3.13), la conductivité thermique des électrons :

$$K_e = \frac{1}{T_e} \left(K_2 - \frac{K_1^2}{K_0} \right)$$

où on définit :

$$K_n = - \int \tau \frac{v^2}{3} \varepsilon^n \frac{\partial f_0}{\partial \varepsilon} \frac{2d^3p}{h^3}.$$

3.3.3 Résultats et discussions sur la chronologie de l'ablation femtoseconde

Donnons les résultats obtenus dans le cas d'une cible en aluminium dans l'air ambiant, irradiée par une pulsion d'une durée de 100 fs et d'une longueur d'onde de 400 nm avec une fluence de 5 J/cm². L'absorption de l'énergie du laser par les électrons provoque une très forte augmentation de la pression totale $p = p_e + p_i$, qui se propage à l'intérieur de la matière sous forme d'une onde de compression ou, si la fluence est suffisamment grande, sous forme d'une onde de choc. C'est ce gradient de pression qui est à l'origine du mouvement de la matière. Comme on peut le constater sur la figure (3-2), dans un premier temps c'est la pression électronique p_e qui est dominante, ce n'est que par la suite, du fait du transfert d'énergie vers les ions, que la pression de ces derniers prend le relais. Ce passage, comme on le voit sur la figure (3-2), se fait en un temps $\tau_{ei} \sim 1$ ps qui correspond au temps typique de relaxation des électrons.

Le profil de densité, Fig.3-3, nous fournit une image plus parlante de l'onde de choc qui se propage avec une amplitude et une vitesse croissantes jusqu'à une distance d'environ 0.1 μ m, soit environ au temps $t = 8$ ps, puis décroissent de plus en plus en pénétrant dans le solide. Cette longueur de pénétration correspond à l'épaisseur de peau et à la longueur de diffusion thermique des électrons. La vitesse de propagation de cette onde de choc dépend de la pression, elle est d'environ 14 100 m s⁻¹ au temps $t \sim 8$ ps. Ce qui correspond bien à la valeur théorique approximative de 14 000 m s⁻¹ fournit par la théorie de la propagation des ondes de choc dans les milieux denses [45].

C'est l'onde de raréfaction (de dépression) qui suit l'onde de compression qui provoque l'éjection de la matière. On peut le voir sur le profil des vitesses (Fig.3-4). Dans les régions qui correspondent à l'onde de compression, les vitesses sont négatives, l'onde

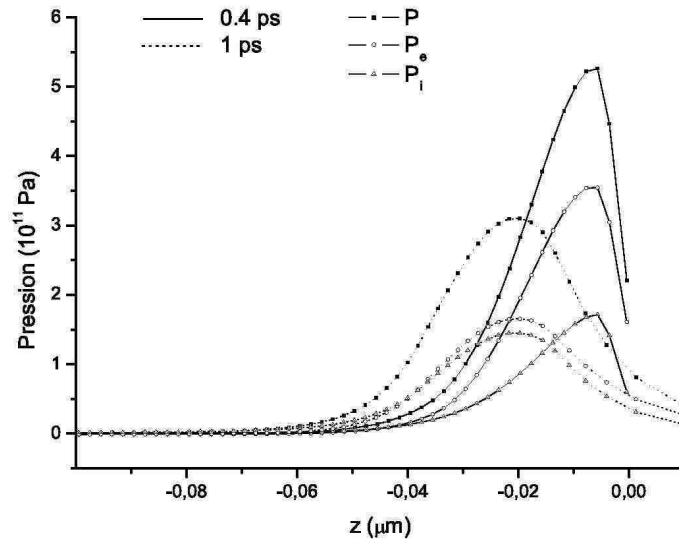


FIG. 3-2 – Profil de pression à $t = 0.4$ ps et à $t = 1$ ps. Au début, la pression électronique p_e est dominante, au fur et à mesure que l'énergie des électrons est transférée par collisions aux ions, la pression p_i de ces derniers augmente et au bout d'environ 1 ps, elle dépasse p_e pour gouverner le mouvement de la matière.

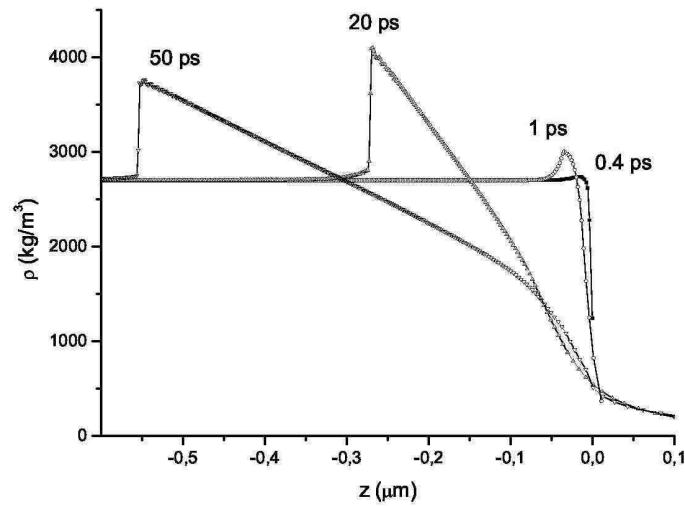


FIG. 3-3 – Profil de densité. L'onde de choc est cette variation abrupte de la densité qui se propage vers l'intérieur du solide. Elle est suivie par une dépression qui met en mouvement le plasma.

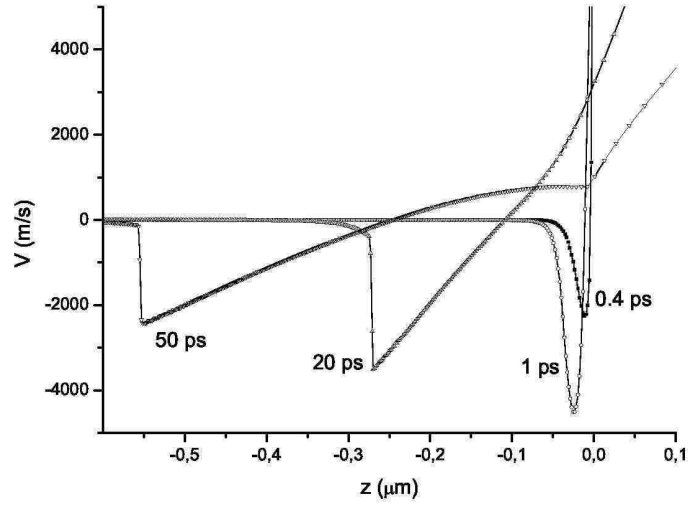


FIG. 3-4 – Profil des vitesses à l'intérieur du matériau.

de raréfaction, elle, correspond à des vitesses positives. La vitesse du plasma éjecté est linéaire en fonction de la distance par rapport à la cible pour ensuite atteindre un maximum qui diminue avec le temps (Fig.3-5).

Les profils de densité et de vitesse nous permettent de calculer le flux de matière $J(t) = \rho(t)V(t)$ qui traverse la surface $z = 0$ en fonction du temps (Fig.3-6). L'analyse montre que le flux passe rapidement par un maximum au temps $t = 0.4$ ps puis diminue lentement jusqu'à pratiquement s'arrêter à 80 ps, alors qu'environ 70 % de la matière est éjectée dans les 30 ps qui suivent le pulse. L'intégrale de cette courbe nous donne une masse éjectée de 0.124 g/m^2 , soit, pour un laser focalisé sur un diamètre de 200 μm , une profondeur d'ablation de 0.046 μm .

3.4 Methode particulaire PIC

La méthode particulaire *Particles-In-Cell* (PIC) connaît un essor formidable dans la simulation numérique de ces dernières années. A la différence de la dynamique moléculaire, les interactions mises en jeu sont de longue portée, d'où les domaines de prédilections de la méthode PIC : la Physique des Plasmas et l'Astrophysique.

Le nombre de particules dans les premières simulations PIC, qui remontent à la fin

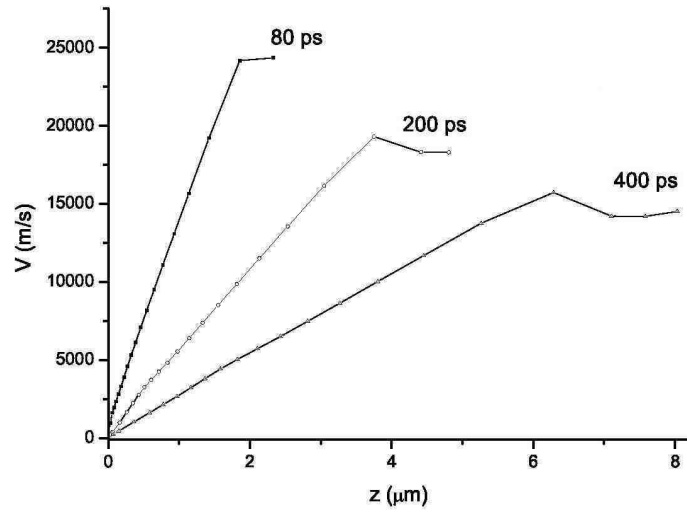


FIG. 3-5 – Profil de vitesse du plasma éjecté dans l'air ambiant.

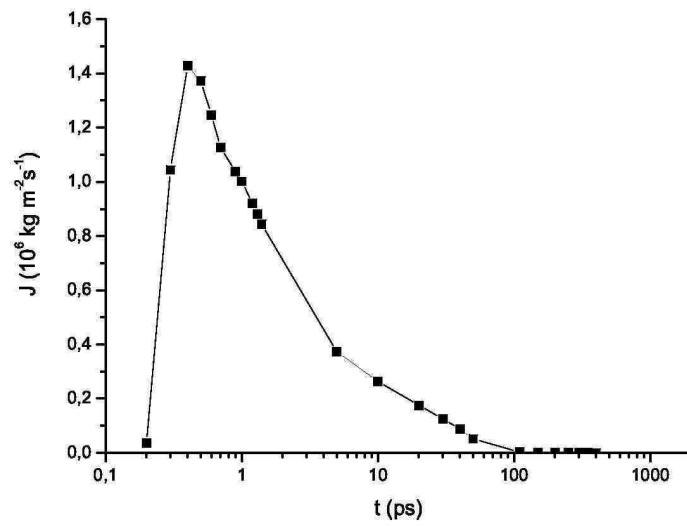


FIG. 3-6 – Flux de matière à travers la surface en fonction du temps.

des années 1950⁴, n'excédait pas le millier. Actuellement, on arrive avec les calculateurs à 10^{10} particules [46].

Donnons la base théorique de cette méthode. Soit un système de N particules identiques, de masse m , soumises à un champ de force $\vec{F}$. Cette force, appliquée par l'extérieur ou générée par les particules elles-mêmes, peut notamment être électromagnétique ou gravitationnelle. L'évolution temporelle de ce système dans l'espace des phases est régie par l'équation de conservation de la densité de particule⁵ :

$$\frac{d}{dt}f(\vec{r}, \vec{v}, t) = 0$$

où $f(\vec{r}, \vec{v}, t)$ est la densité de particules qui se trouvent dans l'intervalle $[\vec{r}, \vec{r} + d\vec{r}]$ et $[\vec{v}, \vec{v} + d\vec{v}]$ (dans un espace des phases à seulement 6 dimensions). Soit dans le cas simple d'un système à une dimension spatiale :

$$\frac{\partial f}{\partial t} + v \frac{\partial f}{\partial x} + \frac{F}{m} \frac{\partial f}{\partial v} = 0. \quad (3.14)$$

Dans le cas où la force F est d'origine électromagnétique, cette équation est dite de Vlasov.

L'espace des phases peut être divisé en cellules qui englobent chacune un certain nombre de particules voisines dans cet espace. A chaque cellule p est associée une densité f_p qui s'écrit :

$$f_p(x, v, t) = N_p S_x(x - x_p(t)) S_v(v - v_p(t)) \quad (3.15)$$

où N_p est le nombre de particules que contient cette cellule, S_x et S_v sont des fonctions enveloppes qui déterminent la "forme" de celle-ci. Ces fonctions doivent être compactes, c'est-à-dire, nulles au-delà d'un petit intervalle et leurs intégrales doivent être normalisées à l'unité pour retrouver le nombre de particules. A ces deux conditions, on rajoute la condition, non nécessaire, de symétrie paire $S_{x,v}(\xi) = S_{x,v}(-\xi)$.

La fonction enveloppe suivant l'axe des vitesses est généralement prise égale à la

⁴O. Buneman, *Phys. Rev.* 115(3), 503 (1959)

⁵Ceci découle du théorème de Liouville de la conservation de la densité de probabilité dans l'espace des phases à $6N$ dimensions de toutes les particules $(\vec{r}_1, \dots, \vec{r}_N; \vec{v}_1, \dots, \vec{v}_N)$.

fonction delta de Dirac $S_v(v - v_p) = \delta(v - v_p)$. Cependant, concernant la fonction enveloppe S_x , plusieurs choix sont possibles. Le choix de cette fonction est crucial, il est pour beaucoup dans la qualité de la simulation puisqu'il détermine la connexion entre la distribution continue des positions des particules et les valeurs du champ électromagnétique ou de la force, qui sont, eux, calculés aux nœuds d'un maillage de l'espace réel (étape dite *Particle Weighting*). Actuellement, elle est prise sous la forme d'une fonction de la série des fonctions b-splines, généralement de l'ordre 0 à l'ordre 2, qui sont, on le rappelle, une série de fonctions obtenues par intégration du terme précédent :

$$b_0(\xi) = \begin{cases} 1 & \text{si } |\xi| < 1 \\ 0 & \text{sinon} \end{cases},$$

$$b_l(\xi) = b_0 \otimes b_{l-1} = \int_{-\infty}^{+\infty} d\xi' b_0(\xi - \xi') b_{l-1}(\xi').$$

La fonction enveloppe est donnée par :

$$S_x(x - x_p) = b_l \left(\frac{x - x_p}{\Delta_p} \right)$$

où Δ_p est la largeur spatiale de la cellule p . La figure (3-7) montre les ordres 0, 1 et 2 des fonctions b-splines [47].

L'ordre 0 correspond à l'algorithme dit *Nearest-Grid-Point* ou NGP. Tant que la particule est à l'intérieur de la cellule, toutes ses propriétés sont attribuées à celle-ci, la charge électrique notamment. Cet algorithme est le plus facile à mettre en œuvre et c'est le plus rapide. Malheureusement, le passage d'une particule d'une cellule à une autre induit une variation brutale de la densité, ce qui produit un bruit numérique susceptible de faire échouer la simulation.

L'ordre 1, le plus utilisé, est dit algorithme *Cloud-In-Cell* (CIC, dit aussi *linear spline*)⁶. La particule, tel un nuage, s'étale sur les cellules voisines de la grille. La charge électrique, ou toute autre propriété, est distribuée sur ces cellules suivant le taux de couverture de chacune d'elles. Le passage de la particule dans son mouvement

⁶Dit aussi Particles-in-cell, d'où le nom de la méthode.

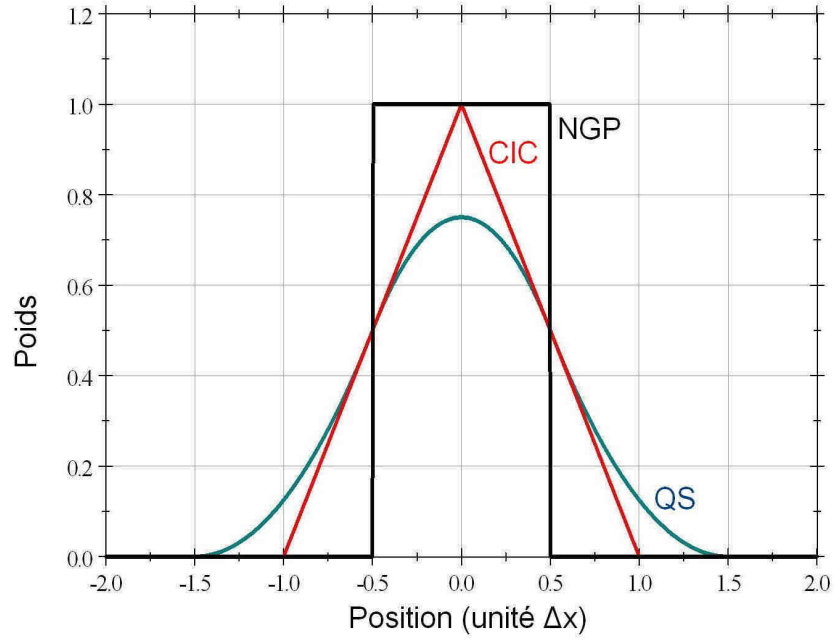


FIG. 3-7 – Les trois premiers ordres des fonctions b-splines.

d'une cellule à une autre est maintenant plus graduel. Le temps de calcul, quant à lui, est sensiblement augmenté. Analytiquement, l'enveloppe s'écrit :

$$\text{CIC} : S_x(x - x_p) = \begin{cases} 1 - \frac{|x - x_p|}{\Delta_p} & \text{si } |x - x_p| \leq \Delta_p \\ 0 & \text{sinon.} \end{cases} \quad (3.16)$$

Pour éliminer les discontinuités sur les bords de l'algorithme CIC, l'ordre 2, ou spline quadratique (QS), est utilisé (Fig.3-7). Cela entraîne une augmentation du coût du calcul numérique.

L'association d'une densité à chaque cellule de l'espace des phases, permet d'écrire la densité totale f comme la somme des densités f_p des cellules :

$$f(x, v, t) = \sum_{p=1}^{N_{cell}} f_p(x, v, t).$$

En remplaçant cette décomposition dans l'équation de Vlasov (3.14), on peut écrire une équation qui est formellement identique à l'équation de Vlasov pour chaque cellule

de l'espace des phases :

$$\frac{\partial f_p}{\partial t} + v \frac{\partial f_p}{\partial x} + \frac{F}{m} \frac{\partial f_p}{\partial v} = 0,$$

la différence est que la force qui apparaît ici est la force que le système entier applique sur les cellules. Les premiers moments de ces équations peuvent facilement être exprimés.

Notant $\langle \dots \rangle = \int \int_{-\infty}^{+\infty} \dots dx dv$, le moment d'ordre 0 donne :

$$\left\langle \frac{\partial f_p}{\partial t} \right\rangle + \left\langle v \frac{\partial f_p}{\partial x} \right\rangle + \left\langle \frac{F}{m} \frac{\partial f_p}{\partial v} \right\rangle = 0,$$

on a $\langle \partial_t f_p \rangle = \partial_t \langle f_p \rangle = \partial N_p$ qui découle de la définition de f_p . Les deux autres termes sont nuls à cause de la condition de la nullité de f_p à $\pm\infty$. Il en résulte l'équation :

$$\frac{dN_p}{dt} = 0. \quad (3.17)$$

Cette relation exprime la conservation du nombre de particules contenues dans une cellule.

Moment d'ordre 1 en x :

$$\left\langle x \frac{\partial f_p}{\partial t} \right\rangle + \left\langle xv \frac{\partial f_p}{\partial x} \right\rangle + \left\langle x \frac{F}{m} \frac{\partial f_p}{\partial v} \right\rangle = 0.$$

Le premier terme se calcul en utilisant la définition (3.15) ainsi que les propriétés des enveloppes (fonctions paires), cela donne :

$$\langle f_p x \rangle = N_p x_p.$$

Le deuxième terme, par integration par parties, est égal à $-\langle f_p v \rangle = -N_p v_p$. Le troisième terme est nul. Nous avons finalement :

$$\frac{dx_p}{dt} = v_p. \quad (3.18)$$

Moment d'ordre 1 en v :

$$\left\langle v \frac{\partial f_p}{\partial t} \right\rangle + \left\langle v^2 \frac{\partial f_p}{\partial x} \right\rangle + \left\langle v \frac{F}{m} \frac{\partial f_p}{\partial v} \right\rangle = 0.$$

On est conduit, en suivant les mêmes étapes de calcul à la relation :

$$\frac{dv_p}{dt} = \frac{F_p}{m} \quad (3.19)$$

où la force F_p est la force moyenne sur la cellule⁷ :

$$F_p(x_p) = \int_{-\infty}^{+\infty} S_x(x - x_p) F(x) dx. \quad (3.20)$$

Les équations (3.17), (3.18), (3.19) et (3.20) qui donnent l'évolution temporelle des cellules dans l'espace des phases sont formellement identiques à la deuxième loi de Newton. Ces cellules se comportent comme des particules réelles, d'où leur nom de pseudo-particules.

La conclusion importante de ce développement est :

L'étude d'un système de N particules peut être ramené à l'étude d'un système de N/N_p pseudo-particules.

⁷On rappelle que $S_v(v) = \delta(v)$ la fonction de Dirac.

Chapitre 4

Mécanisme de formation des stries

4.1 Introduction

Le mécanisme classique d'interférence proposé par Sipe [7] n'est pas satisfaisant dans le régime femtoseconde (voir chapitre I). Les mesures expérimentales de la période et de sa variation en fonction des paramètres du laser ne concordent pas avec les prévisions de la théorie. En effet, la référence [58] montre par exemple que la période ne dépend, du moins pour le silicium, ni de la polarisation du laser ni de l'angle d'incidence contrairement à ce qui est prévu par les relations (2.24) et (2.25).

Pour le mécanisme de formation des HSFL, on avance dans la littérature le processus de génération de seconde harmonique (SHG) [9, 15] où la période des stries est donnée par $\Lambda = \lambda/2n$, n étant l'indice de réfraction du milieu. Cependant, là aussi, les résultats expérimentaux rapportés dans la référence [17] ne concordent pas avec les prévisions de cette théorie. Bonse et *al*, proposent une modification de la théorie d'interférence en incluant les effets non linéaires, notamment l'effet Kerr et la génération d'électrons libres dans la bande de conduction. Ce développement, ainsi que les résultats expérimentaux ne sont satisfaisants que pour les semi-conducteurs et les diélectriques.

D.Dufft et *al* [59] émettent l'hypothèse que le premier pulse sert à créer les irrégularités sur la surface de la cible pour permettre aux pulses suivants, via le phénomène d'interférence, de produire les ondulations.

D'autres mécanismes sont proposés dans la littérature pour expliquer la formation

des HSFL [17].

Une modélisation type deux températures ou hydrodynamique, qui est souvent utilisée pour décrire l'absorption de l'énergie laser par un solide ainsi que l'ablation, ne peut être utilisée ici du fait du caractère thermodynamique du modèle (échelle de temps grande devant la période du laser ~ 2 fs).

Dans ce contexte, on pourra utiliser les équations cinétiques de Vlasov ou de Boltzmann couplées aux équations de Maxwell. A deux dimensions, on obtiendra un système à cinq variables indépendantes auquel on ajoute celles des équations de Maxwell. Du point de vue numérique, cela reste assez difficile à résoudre.

La modélisation que nous proposons considère le solide comme un gaz d'électrons libres sur un fond ionique positif immobile. Ceci peut être justifié par le fait que dans l'interaction d'un laser femtoseconde avec un solide, ce sont les électrons qui absorbent la totalité de l'énergie électromagnétique. Ce n'est qu'après un certain temps de relaxation, de l'ordre de quelques picosecondes, que le gaz électronique transfère une partie de son énergie au réseau d'ions.

Cette hypothèse, qui n'est évidemment valide qu'au début de l'interaction, suggère l'utilisation de la méthode PIC bien connue dans la physique des plasmas. Elle a l'avantage d'être très facile d'utilisation et permet d'inclure plusieurs processus de collision.

4.2 Modèle adopté

Pour simuler la formation des nanostructures, on considère le métal comme un réseau cristallin d'ions immobiles baignant dans un gaz d'électrons libres. Le régime femtoseconde et l'inertie des ions impliquent que ces derniers peuvent être considérés comme immobiles durant toute l'impulsion laser. Dans ce cas, ce sont les électrons libres qui absorbent la quasi-totalité de l'énergie du laser par le processus de *bremsstrahlung* inverse. Ce fait est confirmé par les simulations du modèle à deux températures et du modèle fluide décrits précédemment [48].

Cependant, le modèle fluide n'est pas applicable ici du fait que le système soit fortement hors équilibre thermodynamique. Dans ce travail, nous nous intéressons à

la méthode PIC à deux dimensions (dite 2D2V) pour modéliser la situation décrite précédemment.

L'intensité du laser est considérable, de l'ordre de 10^{19} W m^{-2} , la vitesse des électrons peut atteindre rapidement des valeurs comparables à la vitesse de la lumière c , aussi nous utilisons un modèle relativiste. Les équations de mouvement relativiste d'un électron (ou d'une pseudoparticule) dans un champ électromagnétique sont :

$$\frac{d\vec{u}}{dt} = \frac{-e}{m_e}(\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}) \quad (4.1a)$$

$$\frac{d\vec{r}}{dt} = \vec{v} = \gamma^{-1}\vec{u} \quad (4.1b)$$

$$\gamma = \sqrt{1 + \frac{u^2}{c^2}}, \quad (4.1c)$$

couplées aux équations de Maxwell (2.12). Dans ce travail, nous avons négligé l'effet du champ magnétique devant celui du champ électrique¹, la force de Lorentz est réduite à son premier terme $-e\vec{E}$. Nous envisageons de l'introduire dans un travail futur.

Les profils spatial et temporel de l'impulsion sont gaussiens (figures 4-1 et 4-2). L'enveloppe temporelle de l'intensité est donnée par l'expression :

$$I(t) = I_0 \exp \left(-2 \ln 2 \left(\frac{t - t_{\max}}{\tau_p} \right)^2 \right).$$

Celle du champ électrique est :

$$E_x(t) = E_0(t) \exp \left(-\ln 2 \left(\frac{t - t_{\max}}{\tau_p} \right)^2 \right)$$

où $E_0(t)$ est la composante oscillante.

Concernant les propriétés électriques du solide, la conductivité électrique s'exprime à partir de la fréquence de collision et de la fonction diélectrique données respectivement par les relations (2.19) et (2.3). Son expression s'écrit :

$$\sigma = \frac{\varepsilon_0 \nu \omega_{pe}^2}{\omega^2 + \nu^2}, \quad (4.2)$$

¹Mais aussi pour le coût numérique que cela engendre.

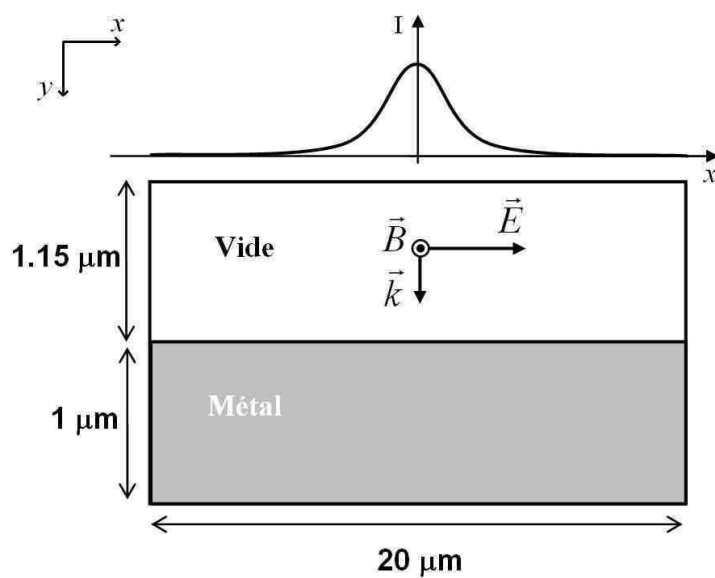


FIG. 4-1 – Géométrie du domaine de calcul. Le laser est linéairement polarisé, $\vec{k}$ est le vecteur d'onde. Le profil gaussien du haut, représente le profil spatial de l'intensité du faisceau laser.

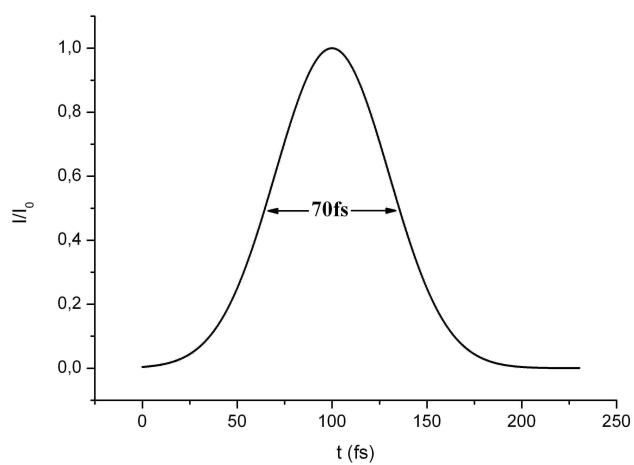


FIG. 4-2 – Profil temporel de l'impulsion laser de durée 70 fs à mi hauteur.

où la fréquence ν et la fréquence plasma ω_{pe} dépendent de la densité des électrons n_e .

4.2.1 Discrétisation de l'équation du mouvement

La forme adimensionnelle des équations (4.1) est :

$$\frac{d\vec{U}}{d\mathcal{T}} = -\vec{\mathcal{E}} \quad (4.3a)$$

$$\frac{d\vec{R}}{d\mathcal{T}} = \vec{V} = \gamma^{-1}\vec{U} \quad (4.3b)$$

$$\gamma = \sqrt{1 + \frac{U^2}{C^2}} \quad (4.3c)$$

où nous avons introduit les quantités adimensionnelles temps, position, vitesse et champ électrique :

$$\mathcal{T} = \omega_{pe} t \quad \vec{R} = \frac{1}{\lambda_D} \vec{r}$$

$$\vec{V} = \frac{1}{v_T} \vec{v} \quad \vec{\mathcal{E}} = \frac{1}{\mathcal{E}_0} \vec{E}$$

où les paramètres de référence sont :

$$\begin{aligned} \omega_{pe} &= \sqrt{\frac{n_{e0}e^2}{\varepsilon_0 m_e}} & \lambda_D &= \sqrt{\frac{\varepsilon_0 k_B T}{n_{e0}e^2}} \\ v_T &= \sqrt{\frac{k_B T}{m_e}} = \lambda_D \omega_{pe} & \mathcal{E}_0 &= \frac{n_{e0}e\lambda_D}{\varepsilon_0}. \end{aligned} \quad (4.4)$$

Ils représentent respectivement la fréquence plasma, la longueur de Debye et la vitesse thermique. La valeur du dernier paramètre est choisie par convenance. La vitesse adimensionnelle de la lumière est $C = c/v_T$.

Le schéma de discrétisation le plus utilisé pour sa facilité de mise en œuvre et sa rapidité est sans doute le schéma explicite dit "*Leap-frog*", ou "saute-mouton". Il ne requiert qu'un nombre réduit d'opérations et un stockage en mémoire relativement

faible [46]. Soit le développement en série de Taylor du vecteur vitesse :

$$\begin{aligned}\vec{v}\left(t + \frac{\Delta t}{2}\right) &= \vec{v}(t) + \frac{\Delta t}{2} \frac{d\vec{v}}{dt}(t) + \frac{\Delta t^2}{8} \frac{d^2\vec{v}}{dt^2}(t) + o(\Delta t^2) \\ \vec{v}\left(t - \frac{\Delta t}{2}\right) &= \vec{v}(t) - \frac{\Delta t}{2} \frac{d\vec{v}}{dt}(t) + \frac{\Delta t^2}{8} \frac{d^2\vec{v}}{dt^2}(t) + o(\Delta t^2).\end{aligned}$$

La soustraction de ces deux expressions donne :

$$\vec{v}\left(t + \frac{\Delta t}{2}\right) - \vec{v}\left(t - \frac{\Delta t}{2}\right) = \Delta t \frac{d\vec{v}}{dt}(t) + o(\Delta t^2). \quad (4.5)$$

La même procédure appliquée au vecteur position donne :

$$\vec{r}(t + \Delta t) = \vec{r}(t) + \Delta t \vec{v}\left(t + \frac{\Delta t}{2}\right) + o(\Delta t^2). \quad (4.6)$$

En appliquant ces deux expressions aux équations (4.3), l'avancement de la particule se fait, à chaque itération, avec la suite des opérations suivantes :

$$\vec{R}^{n+1} = \vec{R}^n + \Delta \mathcal{T} \vec{V}^{n+\frac{1}{2}} \quad (4.7a)$$

$$\vec{U}^{n+\frac{3}{2}} = \vec{U}^{n+\frac{1}{2}} - \Delta \mathcal{T} \vec{\mathcal{E}}^{n+1} \quad (4.7b)$$

$$\vec{V}^{n+\frac{3}{2}} = \left(1 + \frac{(\vec{U}^{n+\frac{3}{2}})^2}{C^2}\right)^{-1/2} \vec{U}^{n+\frac{3}{2}}, \quad (4.7c)$$

où la troncature induit une erreur de l'ordre de Δt^2 . On a utilisé la convention de notation habituelle du temps $X^n \equiv X(t = n\Delta t)$. Les positions et les champs sont calculés aux instants multiples de Δt , alors que les vitesses sont calculées aux milieux des intervalles, c'est-à-dire, aux instants $(n + 1/2)\Delta t$ (fig.4-3).

Les positions et les vitesses initiales sont données. Dans notre simulation, les positions initiales sont distribuées de manière à avoir une densité de charge électrique initiale nulle sur tout le métal, et les vitesses initiales suivent la distribution de Maxwell des vitesses à la température initiale. Pour ce faire, chaque composante de la vitesse est tirée aléatoirement suivant la loi normale, centrée à zéro et avec une variance égale à v_T .

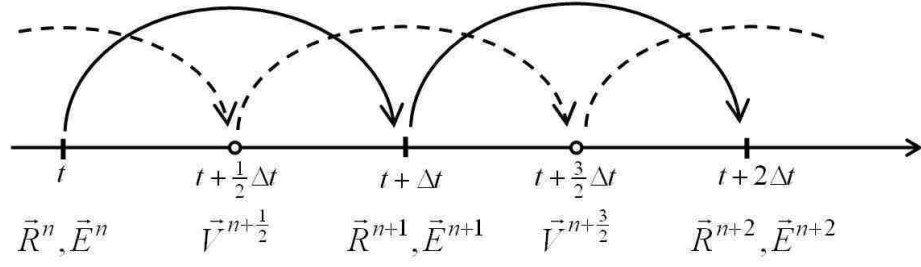


FIG. 4-3 – Schématisation de l’algorithme Leap-frog. Les flèches en lignes continues représentent la mise à jour des positions et du champ électrique ; les lignes discontinues représentent la mise à jour des vitesses.

4.2.2 Stabilité de l’algorithme *Leap-frog*

Il est possible d’étudier la stabilité de la discrétisation *leap-frog* dans le cas d’un oscillateur harmonique. L’équation du mouvement à une dimension est :

$$\frac{d^2x(t)}{dt^2} = -\omega_0^2 x(t)$$

où ω_0 est la pulsation propre de l’oscillateur. Une exponentielle complexe de la forme $\exp(-i\omega_0 t)$ en est une solution simple. La discrétisation centrée (ou *leap-frog*) de la dérivée seconde déduites des relations précédentes (4.5) et (4.6), conduit à écrire l’équation :

$$\frac{x(t + \Delta t) - 2x(t) + x(t - \Delta t))}{\Delta t^2} = -\omega_0^2 x(t). \quad (4.8)$$

Pour cette équation discrétisée, nous adoptons une solution sous la forme :

$$x(t) = x_0 \exp(-i\omega t)$$

où la pulsation ω est inconnue. En la remplaçant dans (4.8) , on arrive à la relation :

$$\sin\left(\frac{\omega \Delta t}{2}\right) = \pm \frac{\omega_0 \Delta t}{2}. \quad (4.9)$$

Si le choix de Δt est telle que $\omega_0 \Delta t / 2 > 1$ alors forcément ω est complexe : $\omega = \omega' + i\omega''$.

La solution s'écrit dans ce cas :

$$x(t) = x_0 \exp(-i\omega' t) \exp(\omega'' t).$$

La seconde exponentielle est un facteur de nature à introduire des instabilités numériques [46].

Si maintenant $\omega_0 \Delta t / 2 \leq 1$ l'équation (4.9) conduit à un ω réel. Le développement en série de la fonction sinus nous permet d'écrire :

$$\frac{\omega \Delta t}{2} \left[1 - \frac{1}{6} \left(\frac{\omega \Delta t}{2} \right)^2 + \dots \right] = \frac{\omega_0 \Delta t}{2},$$

On en déduit que $\omega \approx \omega_0$ quand $\Delta t \ll 1$ avec une erreur de l'ordre de Δt^2 .

En résumé, la méthode leap-frog que nous adoptons est stable à la condition de choisir le pas de temps Δt tel que :

$$\omega_{pe} \Delta t < 2. \quad (4.10)$$

Le choix de Δt se fait par un compromis entre le temps de calcul et la précision des résultats. Le choix habituel est d'admettre une erreur d'environ 1%, soit :

$$\omega_{pe} \Delta t \approx 0.2. \quad (4.11)$$

Nous avons adopté dans nos simulations une valeur comparable $\Delta \mathcal{T} = 0.265$.

4.2.3 Conditions aux bords

Il existe trois types de conditions aux bords utilisées dans la méthode PIC : la périodicité, l'échange des particules (absorption et/ou injection) et la réflexion spéculaire.

La condition de réflexion sur les bords est la seule condition applicable dans notre cas. L'inexistence de symétrie dans notre problème fait que la condition de périodicité n'a pas lieu d'être.

Arrivée sur les bords, la particule est tout simplement réfléchiée telle une boule de billard sur les parois de la table. Les composantes du vecteur vitesse de la particule

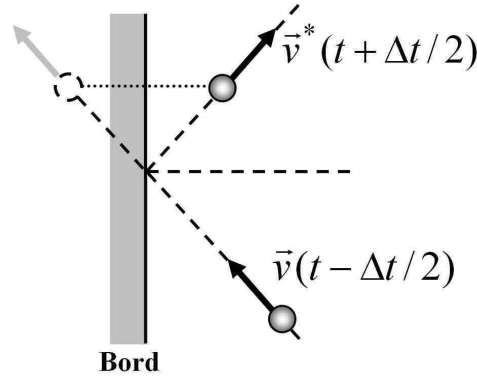


FIG. 4-4 – Schéma de la réflexion spéculaire sur un bord. La position de la particule tracée avec une ligne discontinue, à gauche du bord, et la vitesse associée sont ceux correspondant à l’instant $t + \Delta t$ ($t + \Delta t/2$ pour la vitesse) si le bord n’existait pas.

sont transformées par une symétrie miroir dont l’axe est le bord :

$$v_{\perp}^* = -v_{\perp} \quad (4.12a)$$

$$v_{\parallel}^* = v_{\parallel} \quad (4.12b)$$

où $v_{\perp}^*$ et $v_{\perp}$ représentent, respectivement, la nouvelle et l’ancienne projection de la vitesse sur l’axe perpendiculaire au bord. Les composantes parallèles sont indicées par le signe $\parallel$. La composante parallèle du vecteur position n’est pas modifiée alors que la composante perpendiculaire est transformée par la même symétrie miroir (Fig.4-4).

4.2.4 Algorithme de la méthode PIC

L’algorithme de la méthode PIC est assez simple (Fig.4-5). A partir des valeurs initiales, on calcule les propriétés du solide à partir des positions des pseudoparticules : densité électronique, fréquence de collision (2.3) et conductivité (4.2),...etc. Ces propriétés sont utilisées pour résoudre la totalité des équations de Maxwell dans le cas d’un modèle électromagnétique ou seulement l’équation de Poisson dans le cas de l’approximation électrostatique. A ce niveau on dispose des valeurs du champ électrique aux nœuds de la grille de calcul (Fig. 4-6). L’interpolation du champ électrique aux positions des particules se fait suivant l’algorithme CIC (*Cloud-In-Cell*) dont l’enveloppe est la fonction (3.16) et on en déduit la force qui s’exerce sur chaque particule. Les

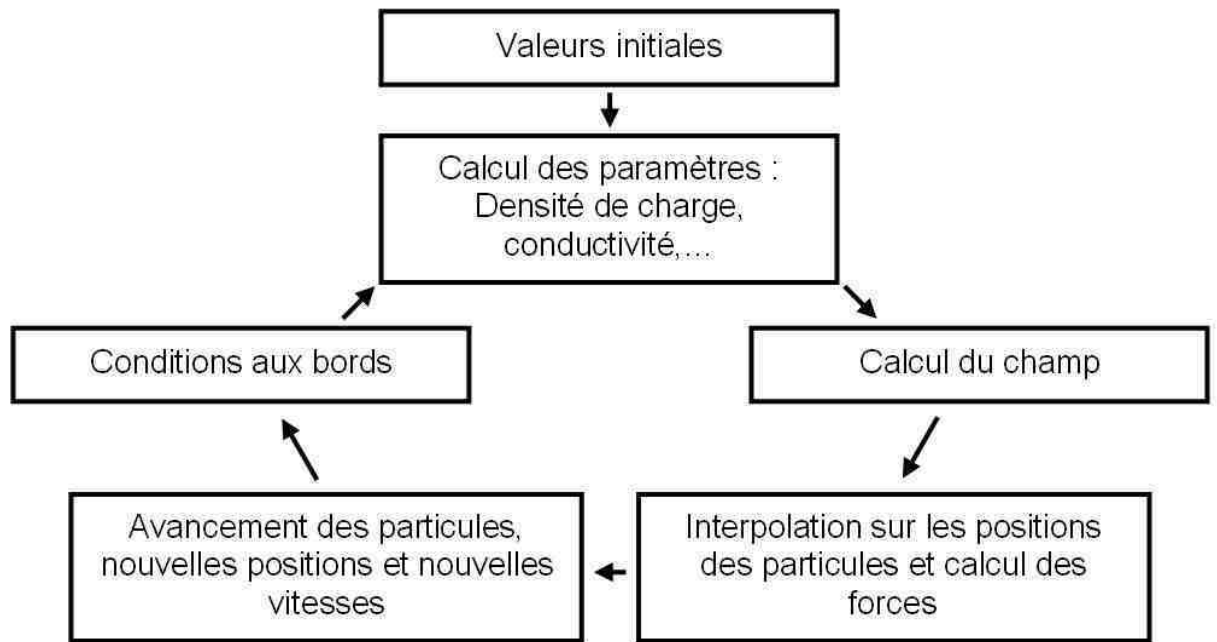


FIG. 4-5 – Organigramme de la méthode PIC.

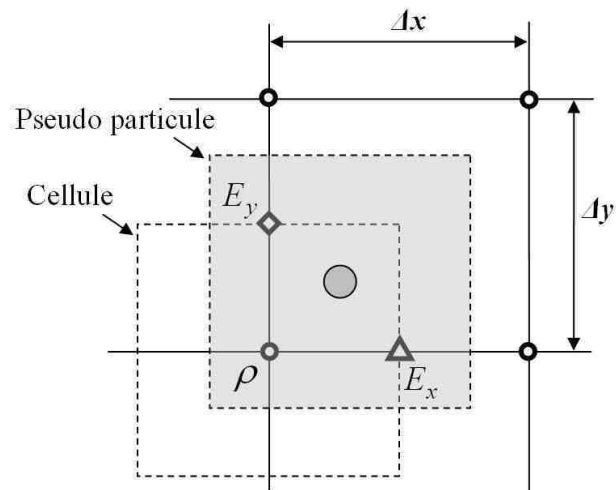


FIG. 4-6 – Maillage du domaine de calcul. On remarque que les composantes du champ électrique ne sont pas calculées aux mêmes positions de la grille. La charge électrique portée par une pseudoparticule est partagée sur les cellules voisines proportionnellement à la surface couverte par chacune d'elles (CIC).

relations (4.7) permettent de calculer les nouvelles positions et les nouvelles vitesses qui seront corrigées dans un autre sous-programme en appliquant les conditions aux bords (4.12). L'algorithme est bouclé en recalculant les propriétés du métal avec les nouvelles positions (Fig.4-5).

4.3 Simulation d'un modèle électrostatique

Dans un premier temps, nous avons choisi de nous limiter à un modèle électrostatique. Le champ électrique est déterminé avec l'équation de Poisson :

$$\Delta\phi = -\frac{e}{\varepsilon_0}(n_i - n_e) \quad (4.13)$$

où ϕ est le potentiel électrique, n_e et n_i sont respectivement les densités des électrons et des ions. Comme nous l'avons déjà mentionné, la densité ionique est constante. Le champ électrique résultant de cette séparation de charge est le gradient de ϕ :

$$\vec{E}_{loc} = -\vec{\nabla}\phi, \quad (4.14)$$

auquel on ajoute le champ électrique du laser $\vec{E}_L$ pour donner le champ électrique total :

$$\vec{E} = \vec{E}_L + \vec{E}_{loc} \quad (4.15)$$

que l'on retrouve dans l'équation de Newton (4.1a).

Ce modèle électrostatique n'est évidemment pas suffisant pour décrire la pénétration de l'onde électromagnétique dans un solide. Pour y remédier, on adopte une description phénoménologique du comportement de l'onde réfractée. Ainsi, le champ électrique du laser $\vec{E}_L$ sera simplement multiplié par un facteur d'atténuation local qui dépend de la densité électronique et de certains autres paramètres. Le coefficient d'absorption des électrons libres est donné par l'expression (2.11) :

$$\alpha = \frac{2\omega\kappa}{c}.$$

En prenant en compte la géométrie du domaine de calcul considéré ici (Fig.4-1), le taux d'atténuation du champ électrique est :

$$\kappa(x, y, t) = \int_0^y \alpha(x, y', t) dy', \quad (4.16)$$

où $y = 0$ correspond à la surface du métal et y la profondeur. Le champ électrique du laser s'écrit alors :

$$\vec{E}_L(x, y, t) = \vec{E}_{L0}(x, t) \exp(-\kappa). \quad (4.17)$$

4.3.1 Résolution de l'équation de Poisson : méthode spectrale

Nous avons commencé par utiliser la méthode des différences finies pour résoudre l'équation de Poisson. A deux dimensions elle s'écrit :

$$\frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \phi}{\partial y^2} = -\frac{\rho}{\varepsilon_0} \quad (4.18)$$

La discrétisation de celle-ci nous donne :

$$\begin{aligned} \frac{\phi_{i+1,j} - 2\phi_{i,j} + \phi_{i-1,j}}{\Delta x^2} + \frac{\phi_{i,j+1} - 2\phi_{i,j} + \phi_{i,j-1}}{\Delta y^2} &= -\frac{\rho_{i,j}}{\varepsilon_0} \\ \phi_{i,j-1} + \phi_{i-1,j} - 4\phi_{i,j} + \phi_{i+1,j} + \phi_{i,j+1} &= -\Delta x^2 \frac{\rho_{i,j}}{\varepsilon_0} = S_{i,j} \end{aligned}$$

soit, en utilisant l'écriture matricielle :

$$D\Phi = S$$

où D est une matrice dont seuls les éléments de cinq diagonales ne sont pas nuls que l'on peut noter simplement $diag(1, 0, \dots, 0, 1, -4, 1, 0, \dots, 0, 1)$. Les vecteurs Φ et S sont définis de la manière suivante :

$$\begin{aligned} \Phi &= \begin{bmatrix} \cdots & \phi_{i,j-1} & \cdots & \phi_{i-1,j} & \phi_{i,j} & \phi_{i+1,j} & \cdots & \phi_{i,j+1} & \cdots \end{bmatrix}^T \\ S &= \begin{bmatrix} \cdots & S_{i,j-1} & \cdots & S_{i-1,j} & S_{i,j} & S_{i+1,j} & \cdots & S_{i,j+1} & \cdots \end{bmatrix}^T, \end{aligned}$$

où l'exposant T indique la transposée. En divisant le domaine de calcul en m cellules suivant x et n cellules suivant y , les vecteurs Φ et S ont chacun $m \times n$ éléments et la matrice carré D a une dimension de $(m \times n) \times (m \times n)$. Pour $m = n = 100$ par exemple (ce qui est très insuffisant vue la taille de la cible), la résolution de l'équation de Poisson avec cette méthode exige l'inversion d'une matrice de 10000×10000 . Ce qui n'est pas accessible avec les moyens de calculs dont nous disposons.

Nous avons opté pour une autre méthode beaucoup plus rapide et moins exigeante en moyens de calcul : la méthode spectrale. Le potentiel électrique $\phi(x, y)$ et la source $S(x, y)$ peuvent être décomposés en séries discrètes de Fourier suivant la variable y :

$$\phi(x_i, y_j) \equiv \phi_{i,j} = \frac{2}{n+1} \sum_{k=1}^n C_k(x_i) \sin\left(\pi k \frac{y_j}{L_y}\right) \quad (4.19a)$$

$$\begin{aligned} &= \frac{2}{n+1} \sum_{k=1}^n C_{i,k} \sin\left(\pi k \frac{j}{n+1}\right), \\ S(x_i, y_j) &= \frac{2}{n+1} \sum_{k=1}^n S_{i,k} \sin\left(\pi k \frac{j}{n+1}\right), \end{aligned} \quad (4.19b)$$

où $L_y = (n+1)\Delta y$ est la dimension suivant y du domaine de calcul et $y_j = j\Delta y$. La source S est connue, de même que pour ses coefficients² $S_{i,j}$. Les dérivées secondes de ϕ suivant x et y se calculent facilement puisque nous avons séparé les variables. Le remplacement dans l'équation de Poisson donne :

$$\sum_{k=1}^n \left[\frac{d^2 C_k(x)}{dx^2} - \left(\frac{\pi k}{L_y} \right)^2 C_k(x) \right] \sin\left(\pi k \frac{y_j}{L_y}\right) = \sum_{k=1}^n S_k(x) \sin\left(\pi k \frac{y_j}{L_y}\right)$$

Cette équation est équivalente à n équations différentielles du deuxième ordre avec second membre :

$$\frac{d^2 C_k(x)}{dx^2} - \left(\frac{\pi k}{L_y} \right)^2 C_k(x) = S_k(x)$$

avec $k = 1, 2, \dots, n$. La résolution de ces équations est faite avec la méthode des différences finies. La discrétisation de la deuxième dérivée donne :

$$C_{i+1,k} - \left[2 + \left(\frac{\pi k}{n+1} \right)^2 \right] C_{i,k} + C_{i-1,k} = \Delta x^2 S_{i,k}$$

²Ne pas confondre avec les éléments du vecteur S précédent.

où nous avons pris $\Delta x = \Delta y$. En écriture matricielle :

$$M_k C_k = R_k$$

où les n vecteurs :

$$\begin{aligned} C_k &= \begin{bmatrix} \cdots & C_{i-1,k} & C_{i,k} & C_{i+1,k} & \cdots \end{bmatrix}^T \\ R_k &= \Delta x^2 \begin{bmatrix} \cdots & S_{i-1,k} & S_{i,k} & S_{i+1,k} & \cdots \end{bmatrix}^T, \end{aligned}$$

et les n matrices $M_k = \text{diag} \left[1, -2 - \left(\frac{\pi k}{n+1} \right)^2, 1 \right]$ sont des matrices tridiagonales facilement et rapidement inversibles avec l'algorithme bien connu de Thomas [49].

Une fois ces coefficients calculés, on remonte au potentiel par une transformée de Fourier inverse. Signalons enfin que la décomposition (4.19) peuvent également être écrite en série de cosinus ou, plus généralement, en exponentielle complexe.

4.3.2 Resultats de la simulation électrostatique

Dans cette approximation électrostatique, nous avons considéré deux cas : le cas d'une polarisation linéaire du laser où le domaine de calcul est une coupe transversale de la cible métallique (semblable à la figure 4-1). Dans le second cas, la polarisation est circulaire et le domaine de calcul est la surface du métal "vue d'en haut", où le faisceau laser focalisé peut être décrit par une distribution spatiale gaussienne à deux dimensions. Dans les deux cas, le rayonnement laser tombe perpendiculairement sur la cible.

Dans le premier cas, les profils de densité d'électrons et de champ électrique obtenus sont donnés respectivement sur les figures (4-7) et (4-8). L'intensité maximale du champ électrique du laser est de 10^9 V m^{-1} correspondant à un flux d'énergie de 10^{16} W m^{-2} . La densité électronique correspond à celle du cuivre, soit $6 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$. Les

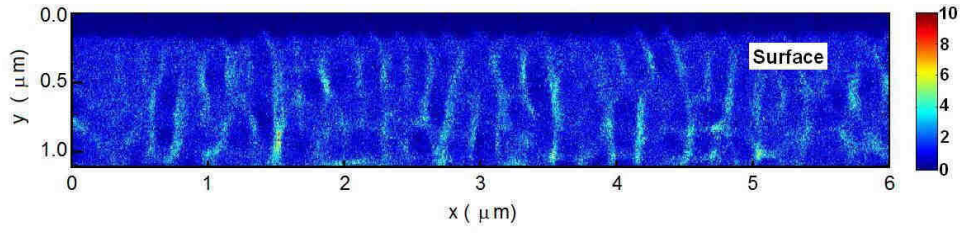


FIG. 4-7 – Densité d'électrons dans le cas d'une polarisation linéaire. L'intensité du laser est d'environ 10^{12} W/cm^2 et sa longueur d'onde est $0.8 \mu\text{m}$. L'unité est la densité du métal $6 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$.

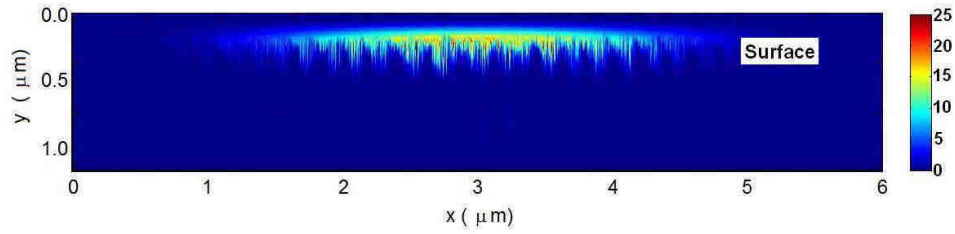


FIG. 4-8 – Profil du champ électrique dans le cas d'une polarisation linéaire. L'unité est 10^9 V/m .

autres paramètres de la simulation sont rassemblés dans le tableau suivant.

Nombre de pseudo-particules (pp)	600060	Pas en espace	5.5 nm
Nombre de particules par pp	30	Dimensions de la cible	$6 \times 3.2 \mu\text{m}^2$
Pas en temps	0.018 fs	Grille	1095×588

Nous notons la formation d'ondulations sur la distribution de la densité des électrons ainsi que sur le profil du champ électrique. Nous soulignons le fait que ces structures sont obtenues tôt au cours de l'impulsion laser (de 10 à 20 fs).

La période spatiale de ces ondulations est d'environ $0.20 \mu\text{m}$. Cette valeur est proche de celle trouvée dans la littérature, qui est, selon les paramètres du laser, entre 0.3 et $0.7 \mu\text{m}$ dans le cas du cuivre. [8]

Les simulations effectuées en faisant varier l'intensité maximale du champ électrique du laser, donne le comportement indiqué dans la figure (4-9). La période spatiale aug-

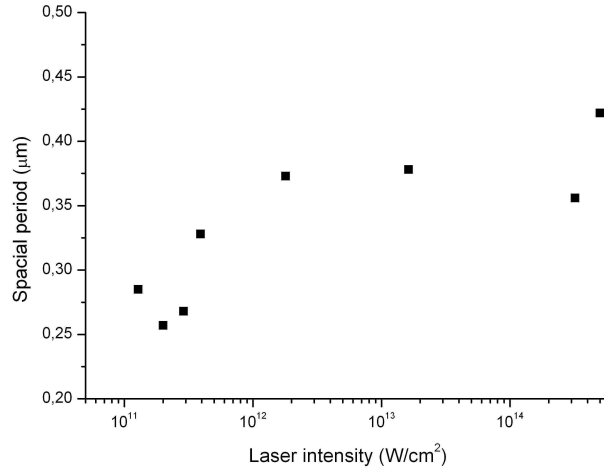


FIG. 4-9 – Dépendance de la période spatiale des stries en fonction de l'intensité du laser.

mente avec l'intensité du laser. Ce résultat est en conformité avec le comportement expérimental rapporté dans les références [8, 50].

Les résultats du cas d'une polarisation circulaire du laser sont donnés sur les figures (4-10) et (4-11) qui représentent, respectivement, les profils de la densité électronique et du champ électrique.

Nous observons la formation d'îlots que nous identifions aux nanoparticules vues précédemment (Fig.1-9) et qui sont observées dans la référence [9]. La période est la même que dans le premier cas. Nous signalons ici le peu de références qui existent concernant le cas de la polarisation circulaire. Nous n'allons pas plus loin dans la simulation de ce cas et nous nous limiterons à dire que les structures nanoparticules sont le résultat d'une superposition de deux ondes linéairement polarisées dans deux directions perpendiculaires, qui produisent deux ensembles de stries perpendiculaires les unes aux autres, l'intersection des deux donne naissance aux nanoparticules.

Ces résultats ont fait l'objet d'une publication dans une revue spécialisée [51] et dans une revue périodique [52].

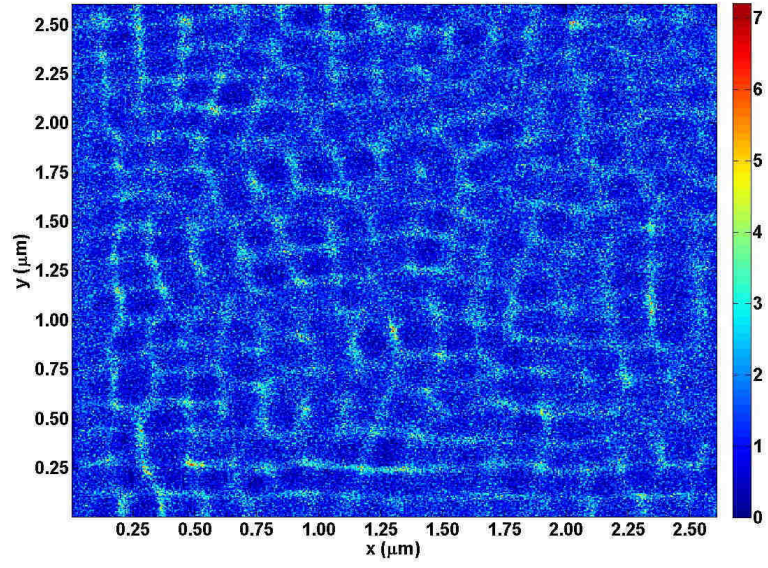


FIG. 4-10 – Densité d'électrons dans le cas d'une polarisation circulaire. Les paramètres sont les même que ceux de la figure (4-7)

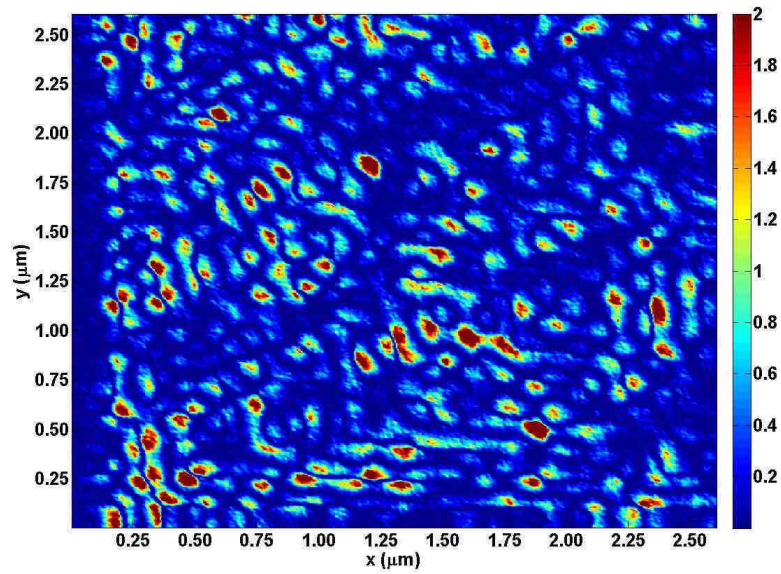


FIG. 4-11 – Profil du champ électrique dans le cas d'une polarisation circulaire.

4.4 Simulation d'un modèle électromagnétique

Afin de mieux comprendre les mécanismes de formation des stries, nous sommes amenés à considérer le modèle électromagnétique. Dans ce contexte, en plus des équations de mouvement, nous devons résoudre l'ensemble des équations de Maxwell (2.12). Comme nous l'avons mentionné précédemment, nous utiliserons le schéma CIC pour le calcul de la densité d'électrons qui nous permettra de calculer la fréquence de collision et la conductivité électrique en fonction des positions. La densité de courant est calculée avec la loi d'Ohm (2.15) en considérant la conductivité donnée par l'expression (4.2).

Pour résoudre les équations de Maxwell, nous avons utilisé la méthode des différences finies dans les domaines spatiale et temporelle. Le paragraphe suivant en donne un aperçu tiré de l'une des références dans ce domaine [54].

4.4.1 Méthode FDTD

La méthode FDTD (*Finite Difference Time Domain*) s'est développée dans les années 1960 essentiellement pour des applications militaires (notamment par Yee en 1966 [55]). Dans les années 1990, les besoins industriels de simulation des composants optoélectroniques ont relancé l'intérêt de cette méthode. Une évolution notable dans ces années là est à signaler : la condition aux bords PML (*Perfectly Matched Layer*) qui a augmenté considérablement la précision de la FDTD [56].

Commençons par le maillage spatial de Yee à deux dimensions (Fig.4-12). Les composantes du champ électrique sont calculées aux points de coordonnées $(i, j + 1/2)$ pour E_x et $(i - 1/2, j)$ pour E_y . L'unique composante du champ magnétique H_z , projection suivant un axe perpendiculaire au plan (x, y) , est calculée au nœud (i, j) . Ce maillage de Yee a l'avantage, parmi d'autres, de permettre une discrétisation en différences finies centrée et donc une erreur du deuxième ordre en espace.

Le théorème d'Ampère et la relation de Faraday s'écrivent :

$$\frac{\partial \vec{E}}{\partial t} = \frac{1}{\varepsilon} \left(\vec{\nabla} \times \vec{H} - \sigma \vec{E} \right) \quad (4.20)$$

$$\frac{\partial \vec{H}}{\partial t} = -\frac{1}{\mu} \vec{\nabla} \times \vec{E} \quad (4.21)$$

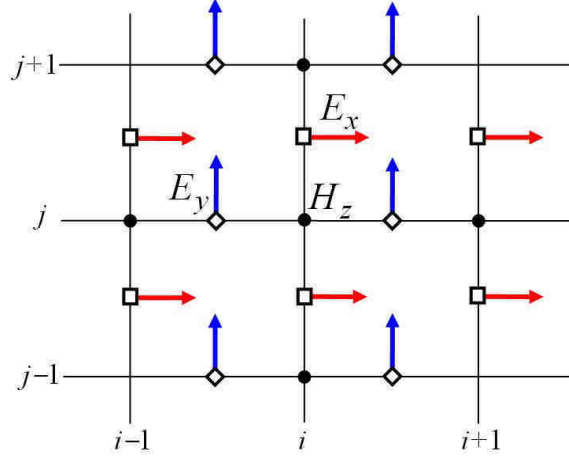


FIG. 4-12 – Schéma de Yee. Les composantes des champs ne sont pas définies aux mêmes positions du maillage.

où nous avons supposé un courant source nul. A deux dimensions et dans le cas d'une onde transverse électrique (TE) qui nous intéresse, la projection de ces équations nous donne :

$$\begin{aligned}\frac{\partial E_x}{\partial t} &= \frac{1}{\varepsilon} \left(\frac{\partial H_z}{\partial y} - \sigma E_x \right) \\ \frac{\partial E_y}{\partial t} &= \frac{1}{\varepsilon} \left(-\frac{\partial H_z}{\partial x} - \sigma E_y \right) \\ \frac{\partial H_z}{\partial t} &= \frac{1}{\mu} \left(\frac{\partial E_x}{\partial y} - \frac{\partial E_y}{\partial x} \right).\end{aligned}$$

Les autres composantes étant nulles. La discrétisation leap-frog en temps donne :

$$\frac{E_x^{n+1/2} - E_x^{n-1/2}}{\Delta t} = \frac{1}{\varepsilon} \left(\frac{\partial H_z^n}{\partial y} - \sigma^n E_x^n \right) \quad (4.22a)$$

$$\frac{E_y^{n+1/2} - E_y^{n-1/2}}{\Delta t} = \frac{1}{\varepsilon} \left(-\frac{\partial H_z^n}{\partial x} - \sigma^n E_y^n \right) \quad (4.22b)$$

$$\frac{H_z^{n+1} - H_z^n}{\Delta t} = \frac{1}{\mu} \left(\frac{\partial E_x^{n+1/2}}{\partial y} - \frac{\partial E_y^{n+1/2}}{\partial x} \right). \quad (4.22c)$$

Les champs, comme dans le cas des équations de mouvement, ne sont pas calculés aux mêmes instants. Les composantes du champ électrique sont calculées aux instants $(n+1/2)\Delta t$, et la composante H_z du champ magnétique est calculée aux instants $n\Delta t$.

On retrouve donc l'erreur du second ordre dans le temps. Remarquons qu'il reste les composantes du champ électrique E_x^n et E_y^n calculées à l'instant $n\Delta t$ dans les seconds membres des deux premières équations de (4.22). Une bonne approximation généralement adoptée consiste à les remplacer par les moyennes arithmétiques des champs antérieur et futur :

$$E_{x,y}^n \approx \frac{E_{x,y}^{n+1/2} + E_{x,y}^{n-1/2}}{2}.$$

La discrétisation spatiale des dérivées donne :

$$\begin{aligned} \frac{\partial H_z^n}{\partial x} &= \frac{H_z|_{i+1,j}^n - H_z|_{i,j}^n}{\Delta x} + o(\Delta x^2) \\ \frac{\partial H_z^n}{\partial y} &= \frac{H_z|_{i,j+1}^n - H_z|_{i,j}^n}{\Delta y} + o(\Delta y^2) \\ \frac{\partial E_x^{n+1/2}}{\partial y} &= \frac{E_x|_{i,j+1/2}^{n+1/2} - E_x|_{i,j-1/2}^{n+1/2}}{\Delta y} + o(\Delta y^2) \\ \frac{\partial E_y^{n+1/2}}{\partial x} &= \frac{E_y|_{i+1/2,j}^{n+1/2} - E_y|_{i-1/2,j}^{n+1/2}}{\Delta x} + o(\Delta x^2). \end{aligned}$$

En remplaçant ces expressions dans les relations (4.22) nous obtenons :

$$\begin{aligned} E_x|_{i,j+1/2}^{n+1/2} &= A_{i,j+1/2}^n E_x|_{i,j+1/2}^{n-1/2} + B_{i,j+1/2}^n [H_z|_{i+1,j}^n - H_z|_{i,j}^n] \\ E_y|_{i+1/2,j}^{n+1/2} &= A_{i+1/2,j}^n E_y|_{i+1/2,j}^{n-1/2} - B_{i+1/2,j}^n [H_z|_{i,j+1}^n - H_z|_{i,j}^n] \\ H_z|_{i,j}^{n+1} &= H_z|_{i,j}^n + C \left[E_x|_{i,j+1/2}^{n+1/2} - E_x|_{i,j-1/2}^{n+1/2} - E_y|_{i+1/2,j}^{n+1/2} + E_y|_{i-1/2,j}^{n+1/2} \right], \end{aligned}$$

où nous avons pris un maillage carré $\Delta x = \Delta y$, et défini les facteurs :

$$A_{i,j}^n = \frac{1 - \frac{\Delta t}{2\varepsilon} \sigma_{i,j}^n}{1 + \frac{\Delta t}{2\varepsilon} \sigma_{i,j}^n}, \quad (4.23a)$$

$$B_{i,j}^n = \frac{\frac{\Delta t}{\varepsilon \Delta x}}{1 + \frac{\Delta t}{2\varepsilon} \sigma_{i,j}^n}, \quad (4.23b)$$

$$C = \frac{\Delta t}{\mu \Delta x}. \quad (4.23c)$$

La conductivité électrique comme nous l'avons vue plus haut est donnée par l'expres-

sion :

$$\sigma_{i,j}^n = \frac{\varepsilon_0 \omega_{pe}^2 |n_{i,j}^n| \nu_{i,j}^n}{\omega^2 + \nu_{i,j}^2}.$$

Elle dépend de la fréquence plasma locale $\omega_{pe}(x, y)$ et de la fréquence de collision $\nu(x, y)$, toutes deux calculées en fonction de la densité électronique $n_e(x, y)$ qui est elle-même calculée à chaque pas de temps connaissant les positions des particules et en appliquant une enveloppe CIC (3.16).

Critère de stabilité de Courant-Friedrich-Levy

La discrétisation temporelle peut induire des instabilités numériques qui risquent de faire diverger le calcul. Nous avons déjà vu un critère concernant la dynamique des particules (relation 4.10). Pour trouver le critère de stabilité de la méthode FDTD on considère l'équation d'onde [54] :

$$\nabla^2 E - \frac{1}{c^2} E = 0$$

et sa solution en onde plane de pulsation ω :

$$E(x, y, t) = E_0 e^{-i(\omega t - k_x x - k_y y)},$$

où ω est inconnue. La discrétisation en différences centrée des dérivées secondes en espace et en temps de cette solution abouti à la relation :

$$\frac{1}{\Delta x^2} \sin^2 \frac{k_x \Delta x}{2} + \frac{1}{\Delta y^2} \sin^2 \frac{k_y \Delta y}{2} - \frac{1}{c^2 \Delta t^2} \sin^2 \frac{\omega \Delta t}{2} = 0.$$

La pulsation est alors donnée par :

$$\omega = \frac{2}{\Delta t} \arcsin \left[c \Delta t \sqrt{\left(\frac{\sin \frac{1}{2} k_x x}{\Delta x} \right)^2 + \left(\frac{\sin \frac{1}{2} k_y y}{\Delta y} \right)^2} \right].$$

Pour que ω soit réel, l'argument de l'arcsinus doit être inférieur ou égal à 1 :

$$c \Delta t \sqrt{\left(\frac{\sin \frac{1}{2} k_x x}{\Delta x} \right)^2 + \left(\frac{\sin \frac{1}{2} k_y y}{\Delta y} \right)^2} \leq 1.$$

Ce qui donne le critère dit de Courant-Friedrich-Levy (CFL), en supposant le cas limite des sinus égaux à 1, qui lie les pas de temps et d'espace :

$$c\Delta t \sqrt{\frac{1}{\Delta x^2} + \frac{1}{\Delta y^2}} \leq 1.$$

Dans notre cas $\Delta x = \Delta y$, le critère se met alors sous la forme :

$$\frac{c\Delta t}{\Delta x} \leq \frac{1}{\sqrt{2}}. \quad (4.24)$$

Dans nos simulations, nous avons adopté une valeur $c\Delta t/\Delta x = 1/2$.

Conditions d'absorption aux bords : PML

Nous avons appliqué des conditions d'espace ouvert sur tous les bords. On a adopté donc la condition de bord absorbant basé sur l'adaptation d'impédance de Bérenger, méthode dite PML. Celle-ci consiste à ajouter au bord une couche absorbante artificielle de manière à minimiser la réflexion.

Lors de la propagation d'une onde d'un milieu A à un autre milieu B, l'intensité réfléchie est déterminée par le facteur de réflexion :

$$\Gamma = \frac{\eta_A - \eta_B}{\eta_A + \eta_B}$$

où $\eta_{A,B}$ sont les impédances intrinsèques des milieux A et B définies par :

$$\eta = \sqrt{\frac{\mu}{\varepsilon}}$$

où μ et ε sont les perméabilité et constante diélectrique du milieu. La réflexion est nulle si :

$$\eta_A = \eta_B.$$

On ajoute au bord du domaine de calcul une couche fictive dont la perméabilité et la permittivité satisfont cette condition. Le détail de cette méthode peut être retrouvé dans les références [54] et [56].

4.4.2 Resultats de la simulation électromagnétique

Nous avons effectué plusieurs simulations en modifiant l'intensité du laser (en variant l'intensité du champ électrique) et sa longueur d'onde. Le matériau de la cible est le cuivre de densité électronique égale à $6 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$ à la température initiale de 300 K. Le nombre de particules par pseudo-particule est de 50, ce choix résulte d'un compromis entre la qualité de la modélisation, la mémoire maximale disponible et le temps de calcul. Pour toutes les simulations, la durée de l'impulsion gaussienne est de 70 fs à mi-hauteur (FWHM), son maximum étant centré à 100 fs, et le temps de la simulation est d'environ 230 fs, soit la durée totale d'une seule impulsion. Evidemment, nous ne pouvons faire de comparaison avec les modèles à deux températures ou hydrodynamique, la différence entre les hypothèses de base est assez importante. Les autres paramètres de la simulation sont résumés dans le tableau suivant

Nombre de pseudo-particules (pp)	151293	Pas en espace	11.5 nm
Nombre de particules par pp	50	Dimensions de la cible	$20 \times 2.1 \mu\text{m}^2$
Pas en temps	0.019 fs	Grille	1739×187

Comportement général

Sur la figure (4-13), nous avons représenté l'évolution temporelle de la densité d'électrons. On y retrouve l'onde de choc, représentée par un pic de densité abrupt qui se propage vers l'intérieur de la cible. Nous avons retrouvé le même comportement concernant l'évolution de la densité de masse dans le modèle hydrodynamique (Fig. 3-3). Cette figure (4-13) montre une partie de la cible dénuée de son nuage d'électrons de conduction. Le réseau d'ions positifs voit sa répulsion électrostatique augmentée fortement. Un calcul doit le confirmer, mais nous supposons que cette répulsion à un moment ou un autre pourra rompre les liaisons atomiques. Une éjection violente des ions, donc de la matière de la cible, finira par se produire. La figure (4-14) montre plus clairement la zone qui porte une charge électrique positive et qui est susceptible d'être éjectée pour former un cratère.

Nous avons constaté l'apparition d'ondes progressives sur la surface de la cible, qui s'éloignent du cratère. Nous les identifions comme étant des plasmons de surface. On

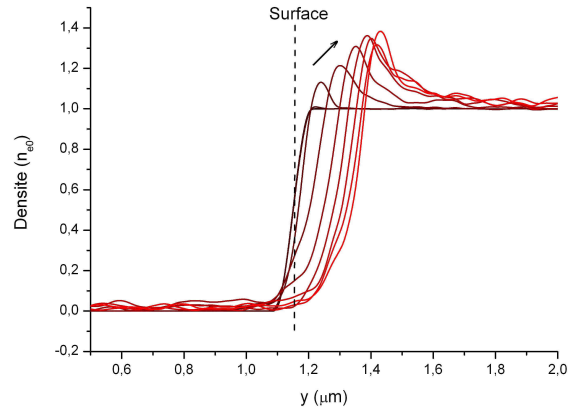


FIG. 4-13 – Profil de densité électronique. La flèche indique le sens chronologique.

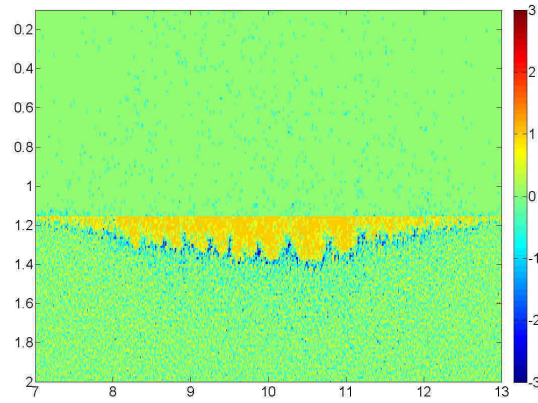


FIG. 4-14 – Densité de charge électrique (en unité en_{e0} , soit en C m^{-3}). La zone qui a la forme d'un cratère est chargée positivement.

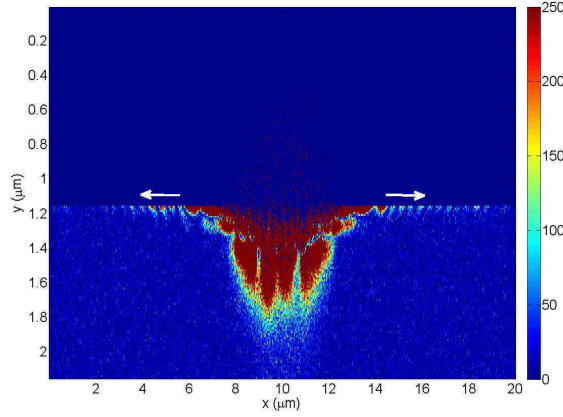


FIG. 4-15 – Création de plasmons de surface observés sur le profil de l'énergie cinétique. Les flèches indiquent le sens du mouvement.

peut les observer distinctement sur la figure (4-15), qui donne la distribution instantanée de l'énergie cinétique, ou encore sur la figure (4-16), qui donne la distribution des particules dans l'espace des phase (x, v_x) . L'analyse a montré que ces plasmons sont des ondes longitudinales. En effet, sur la figure (4-17) qui illustre la distribution des particules dans l'espace réel (x, y) en attribuant des couleurs en fonction de la composante v_x de la vitesse parallèle à la surface, on peut observer ces ondes. Ce n'est pas le cas sur la figure (4-18) où les couleurs sont fonction de la composante perpendiculaire à la surface v_y . Ces plasmons apparaissent aux longueurs d'ondes 0.8 et $1.0 \mu\text{m}$, faiblement à $0.6 \mu\text{m}$ et pratiquement inexistantes à $0.4 \mu\text{m}$. Ils sont de faible amplitude pour des intensités inférieures à $7 \times 10^{19} \text{ W/m}^2$.

On peut tirer de la figure (4-18) des indications sur le comportement du processus d'ablation. On y retrouve l'onde de choc sous la forme d'un front se déplaçant vers l'intérieur de la cible (en rouge sur la figure), les particules éjectées vers l'extérieur (en bleu) et des particules accélérées profondément vers l'intérieur. Sous le cratère en train de se former, on distingue des franges rouges et bleues successivement, qui représentent un mouvement de "cisaillement" du gaz de particules. Nous supposons que c'est cette dynamique qui est à l'origine de l'éjection non homogène de la matière, donc responsable de la formation des stries que nous allons voir dans ce qui suit.

La profondeur de la zone appauvrie en électrons de conduction et qui est susceptible

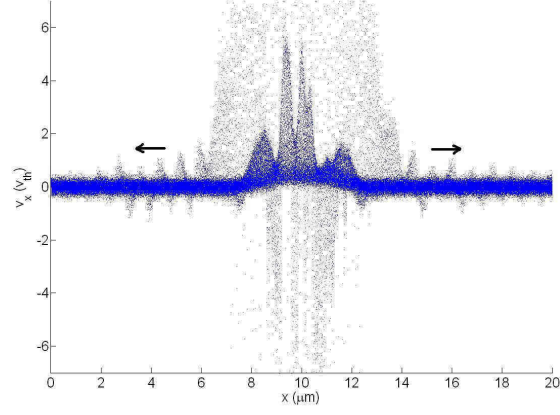


FIG. 4-16 – Espace des phases (x, v_x) . Observation des plasmons de surface, qui se déplacent dans le sens des flèches.

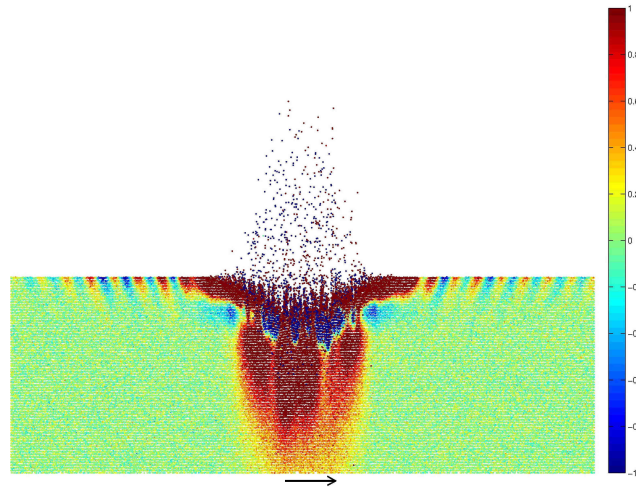


FIG. 4-17 – Distribution des particules dans l'espace réel. La couleur est fonction de la composante v_x (unité v_T), la flèche indique le sens positif.

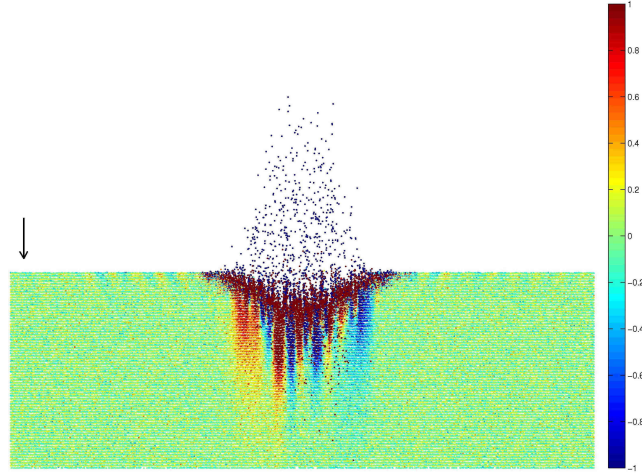


FIG. 4-18 – Distribution des particules dans l'espace réel, où la couleur est proportionnelle à v_y . La flèche indique le sens positif.

d'être éjectée est donnée sur la figure (4-19) en fonction de l'intensité du laser. Le comportement de cette courbe est comparable à la variation mesurée expérimentalement de la profondeur d'ablation par impulsion que l'on retrouve sur la figure (4-20) tirée de la référence [8].

Les stries

Les figures (4-21) à (4-24), représentent les densités électroniques obtenues à la fin des simulations (230 fs) avec les longueurs d'ondes 0.4, 0.6, 0.8 et 1.0 μm et des intensités laser 7.76×10^{19} , 1.12×10^{20} et $1.52 \times 10^{20} \text{ W m}^{-2}$. Des structures en forme d'ondulation apparaissent sur toutes les figures sauf pour la longueur d'onde 0.4 μm . On identifie ces structures aux stries observées expérimentalement.

En fait, d'autres simulations à des intensités plus faibles ont été effectuées. Nous n'avons pas observé de structures car l'éjection de la matière est relativement faible. Cependant, concernant le cas à 0.4 μm , les figures (4-21) ne permettent pas de conclure à l'existence de structures bien que la première impression le suggère. D'autres calculs avec des pas en espace plus petits doivent être réalisés pour espérer aboutir à une conclusion.

L'analyse du spectre de Fourier (voir un exemple sur la figure 4-26), par la méthode

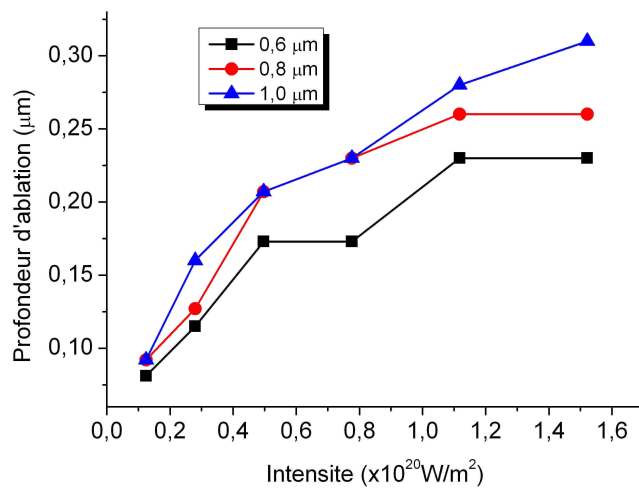


FIG. 4-19 – Profondeur du cratère en fonction de l'intensité du laser.

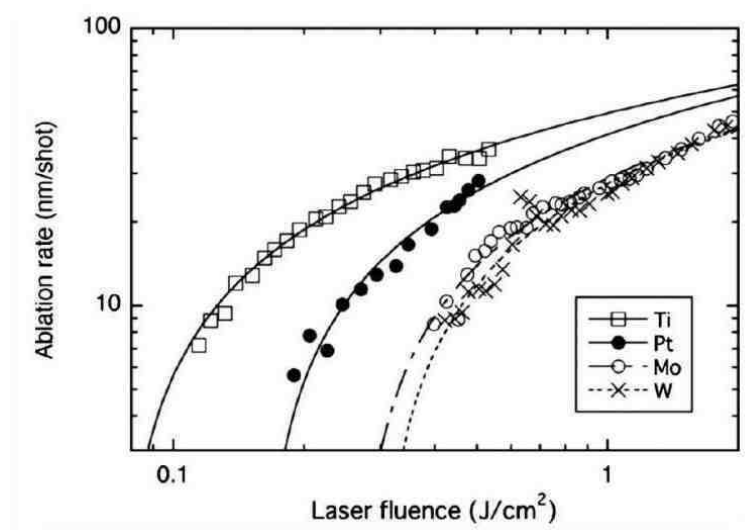


FIG. 4-20 – Profondeur d'ablation par impulsion dans le cas des métaux [8].

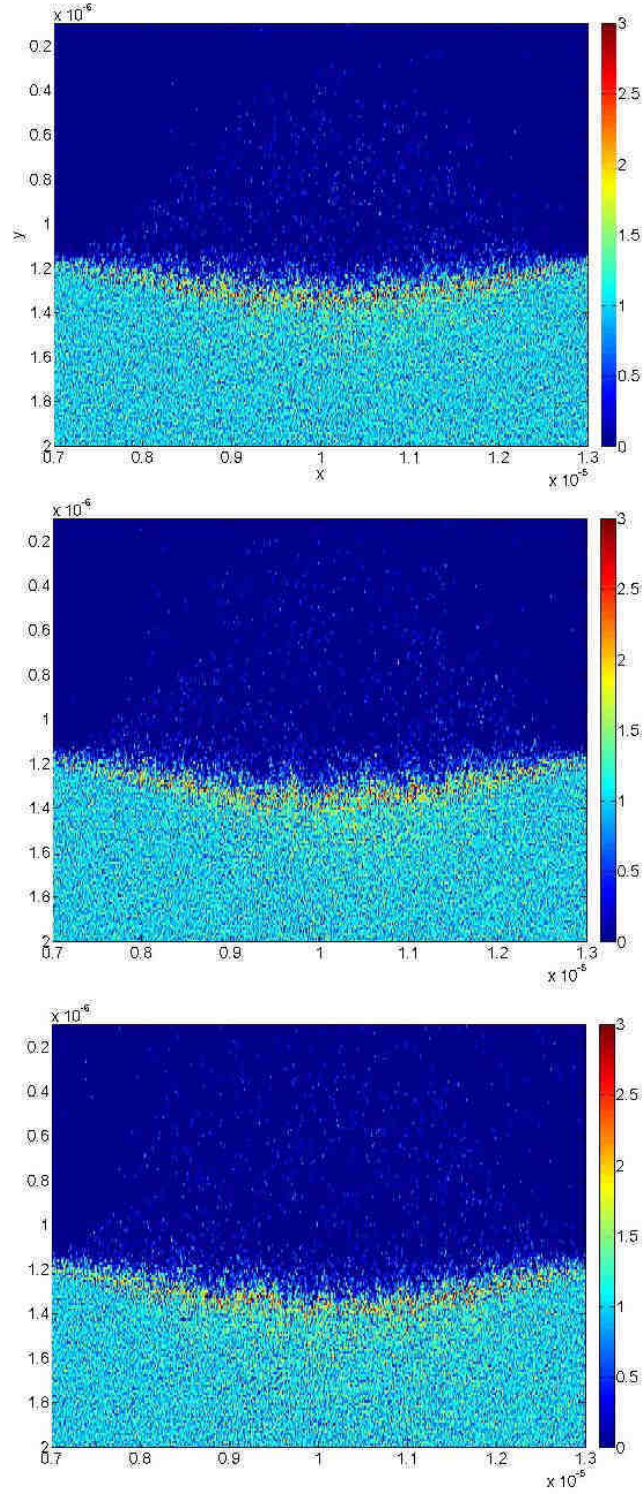


FIG. 4-21 – Densité électronique pour $\lambda = 0.4 \mu\text{m}$ (les intensités sont, de haut en bas, 7.8×10^{19} , 1.1×10^{20} et $1.5 \times 10^{20} \text{ W m}^{-2}$ respectivement).

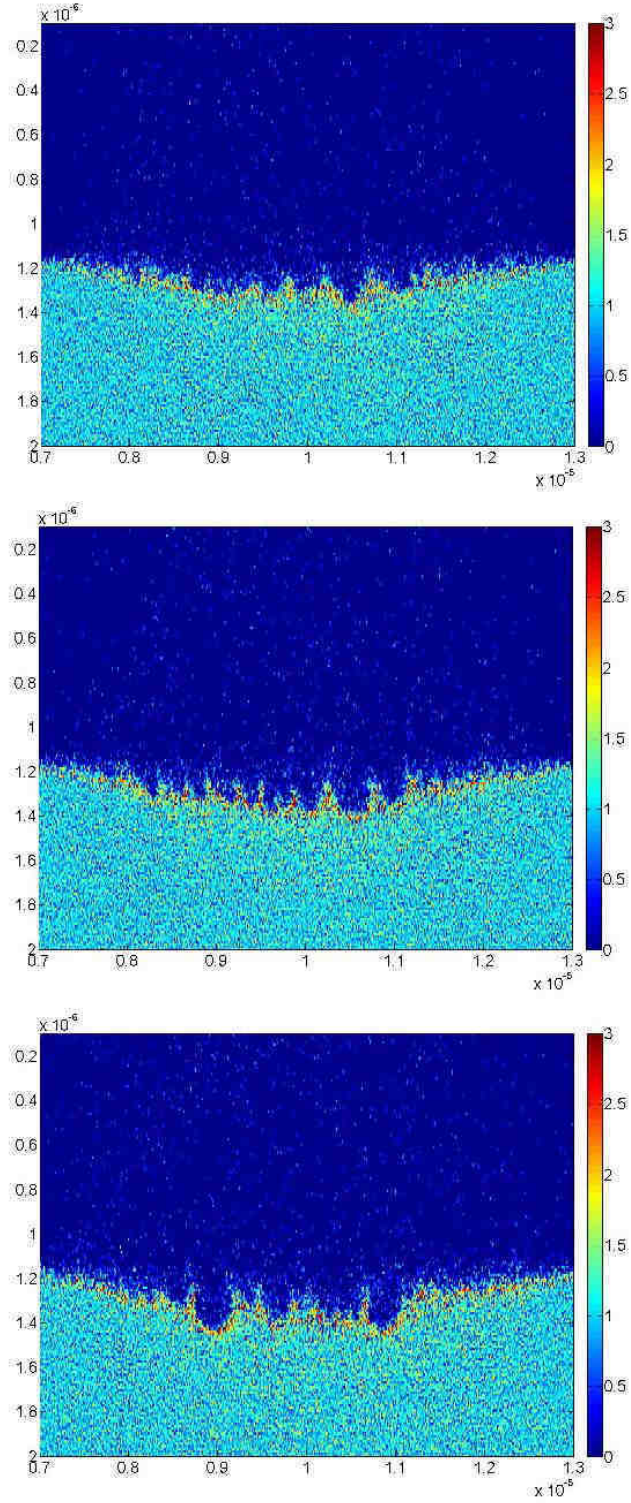


FIG. 4-22 – Densité pour $\lambda = 0.6 \mu\text{m}$ (les intensités sont, de haut en bas, 7.8×10^{19} , 1.1×10^{20} et $1.5 \times 10^{20} \text{ W m}^{-2}$ respectivement).

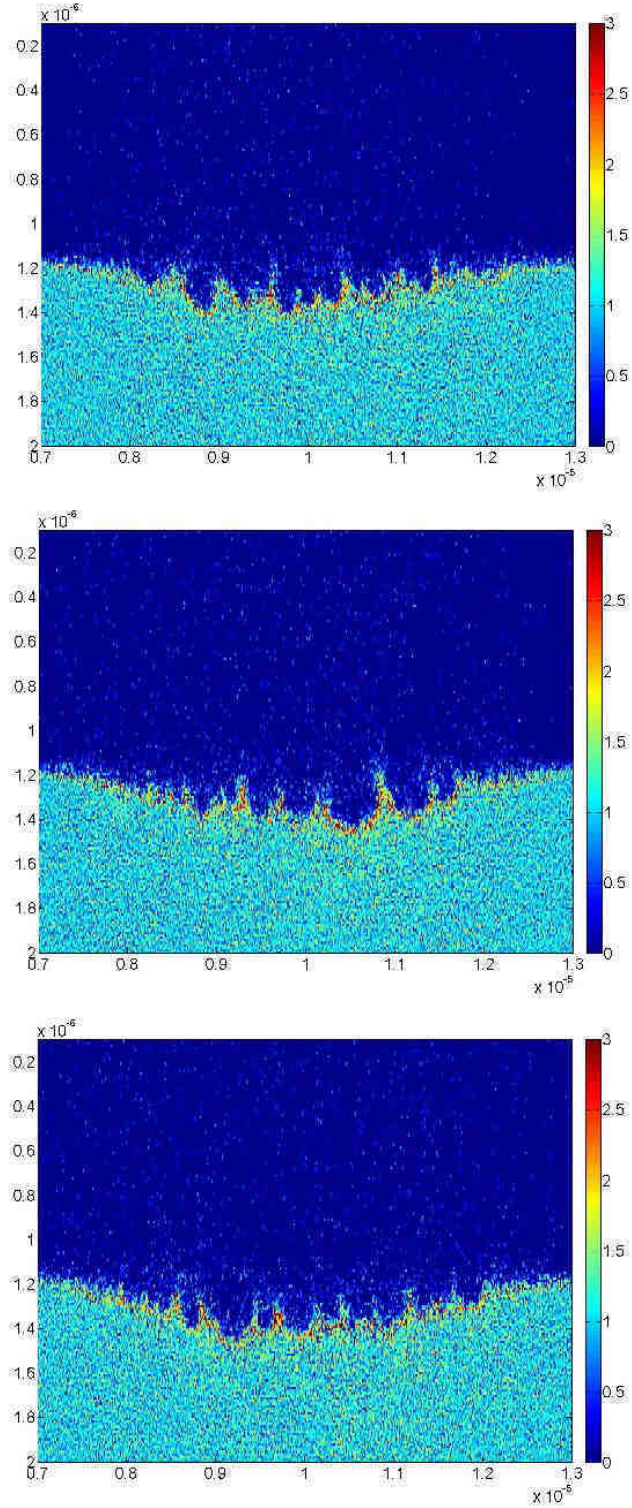


FIG. 4-23 – Densité pour $\lambda = 0.8 \mu\text{m}$ (les intensités sont, de haut en bas, 7.8×10^{19} , 1.1×10^{20} et $1.5 \times 10^{20} \text{ W m}^{-2}$ respectivement).

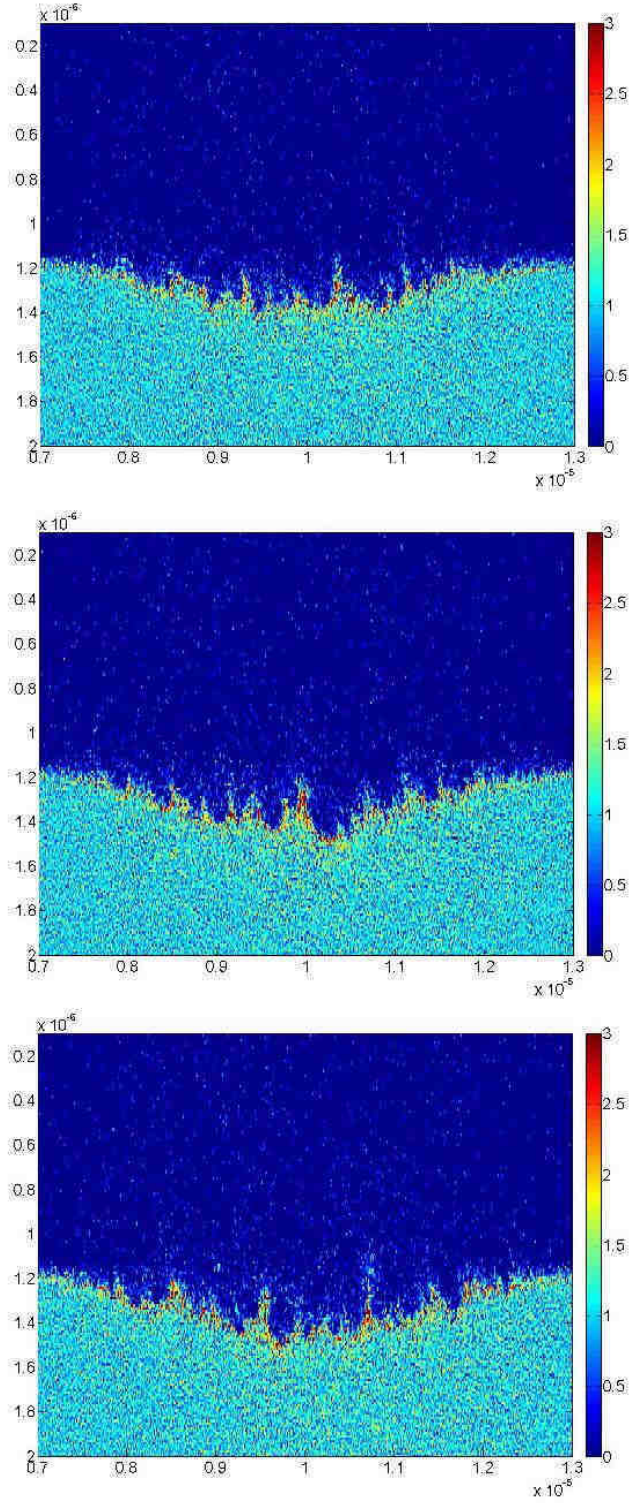


FIG. 4-24 – Densité pour $\lambda = 1.0 \mu\text{m}$ (les intensités sont, de haut en bas, 7.8×10^{19} , 1.1×10^{20} et $1.5 \times 10^{20} \text{ W m}^{-2}$ respectivement).

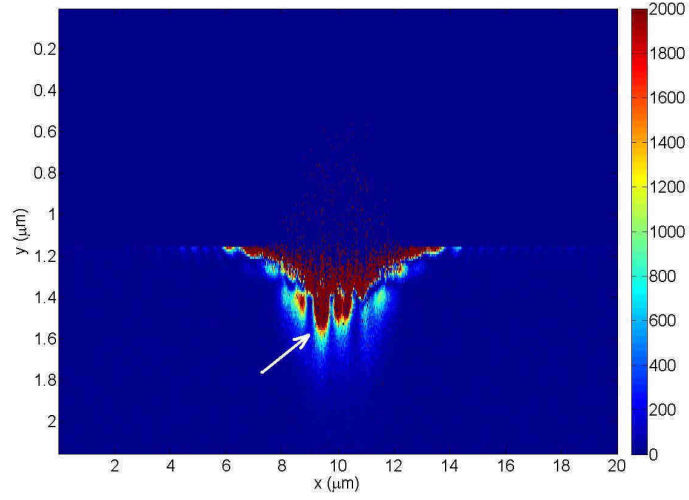


FIG. 4-25 – Energie cinétique. Elle montre clairement une absorption non homogène de l'énergie par les électrons.

FFT, des profils des surfaces des cratères montre l'existence de deux périodes spatiales dans la majorité des simulations. Une, proche de la longueur d'onde du laser alors que l'autre est plus petite. Nous les identifions aux deux types de stries vus précédemment : LSFL et HSFL.

On peut distinguer d'autres stries de périodes spatiales plus petites, d'intensités plus faibles dans le spectre de la figure (4-26). Nous les associons au caractère particulier de la méthode PIC.

Les variations de la période des stries en fonction de la longueur d'onde du laser et en fonction de son intensité sont représentées respectivement sur les figures (4-27) et (4-28). L'espacement entre les stries augmente avec la longueur d'onde. Ceci est confirmé par les mesures expérimentales pour certains métaux, semi-conducteurs et diélectriques [8, 50, 57]. La même tendance d'augmentation de la période lorsque l'intensité laser augmente est observée. Elle est confirmée par les travaux publiés dans les références [8] et [50] sur des métaux tels que le platine, le molybdène, le tungstène, le titane et le cuivre.

Sur les figures des densités, nous pouvons remarquer aussi que la période diminue en allant du centre du cratère à ses bords. C'est l'observation expérimentale rapportée dans les références [58] et [17].

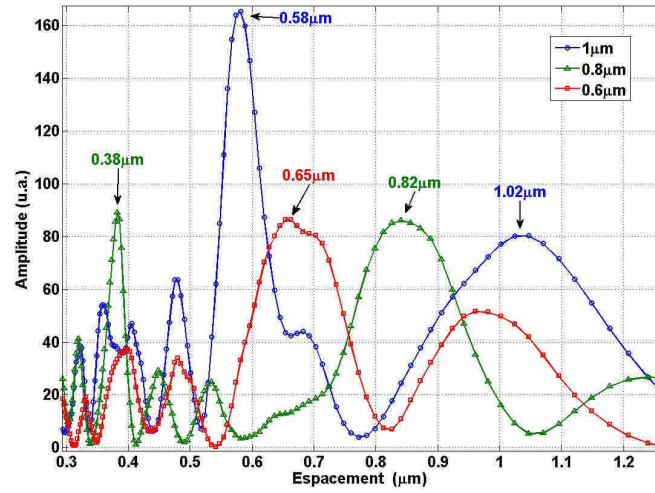


FIG. 4-26 – Spectre de Fourier du profil de la surface du cratère dans le cas d'une intensité de $1.5 \times 10^{20} \text{ W m}^{-2}$.

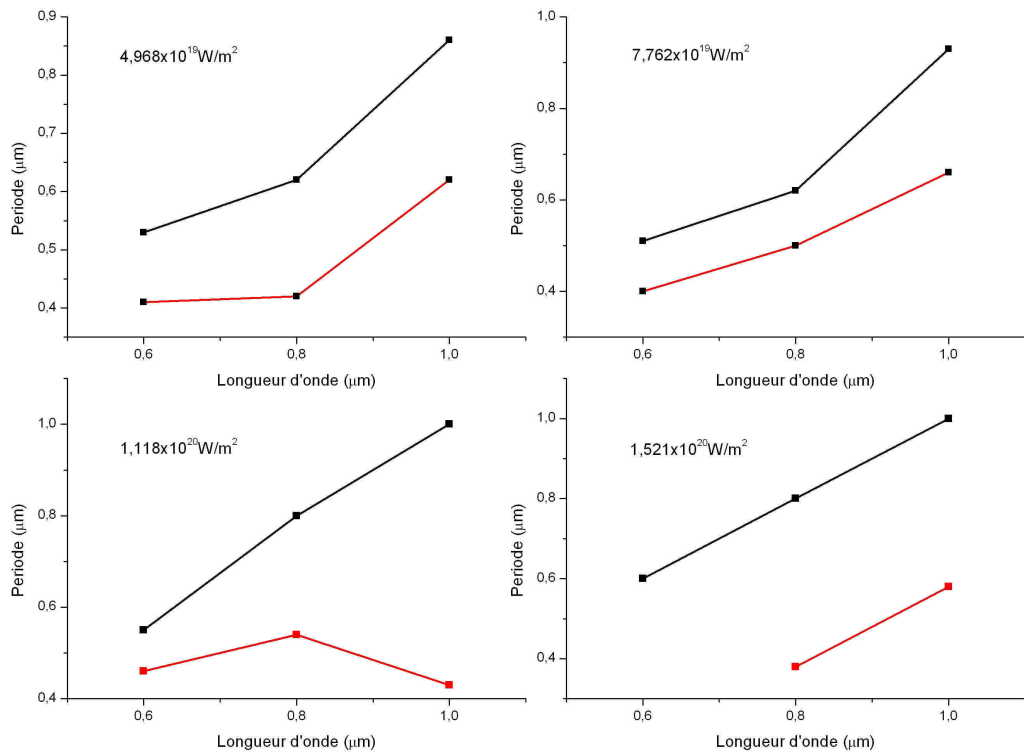


FIG. 4-27 – Période en fonction de la longueur d'onde pour différentes intensités. LSFL en noir et HSFL en rouge.

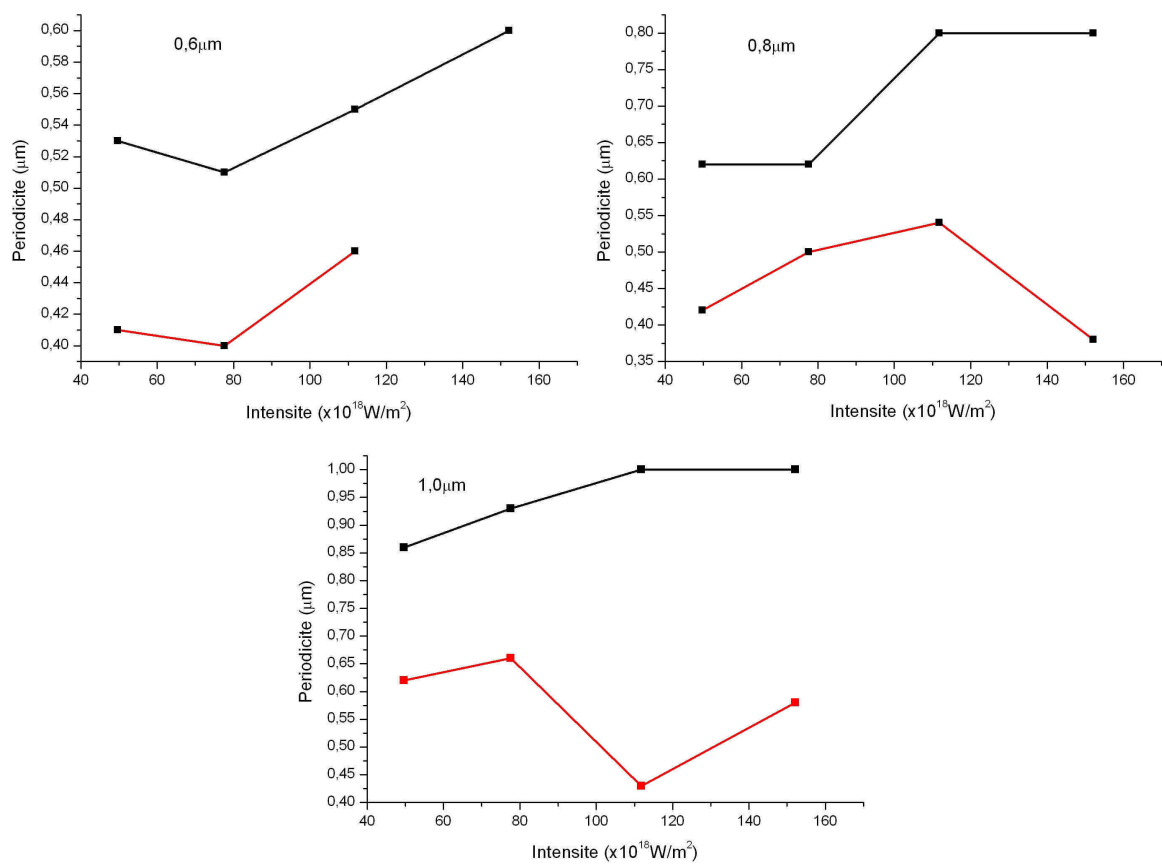


FIG. 4-28 – Période en fonction de l'intensité pour différentes longueurs d'onde. LSFL en noir et HSFL en rouge.

Chapitre 5

Conclusion

L'objet de cette thèse est la simulation de la formation des nano-structures observées sur la surface ablatée d'une cible métallique irradiée par une impulsion laser femtoseconde. L'intérêt principal est de mieux comprendre les mécanismes physiques mis en jeu en vue d'améliorer la précision dans la micro et la nanostructuration de la surface des matériaux. La description théorique de l'ablation laser femtoseconde et de la formation des nanoparticules reste difficile. Cela est dû au fait que les connaissances des propriétés de matériau sont incomplètes dans le domaine des conditions extrêmes qui gouvernent le chauffage de la matière par impulsion laser courte. Les approches les plus courantes sont la modélisation hydrodynamique à deux fluides et le modèle à deux températures. La difficulté de la modélisation hydrodynamique se trouve dans la connaissance incomplète de l'équation d'état (situation hors équilibre). Le travail présenté dans cette thèse considère que des mécanismes hors équilibres sont à l'origine de la formation de ces nanostructures. Après des tentatives infructueuses basées sur la résolution de l'équation de Vlasov, nous avons proposé une modélisation particulière (PIC). Elle a l'avantage d'être équivalente à l'équation de Vlasov et d'être relativement beaucoup plus simple à résoudre numériquement. Dans ce contexte, nous avons d'abord considéré un modèle électrostatique qui décrit la séparation de charges due aux inerties très différentes des électrons et des ions (la masse d'un ion de cuivre est environ 10^5 fois supérieur à la masse d'un électron) et aux temps extrêmement courts (10^{-15} s). Le modèle n'étant pas complet, nous lui avons adjoint phénoménologiquement le comportement de l'onde électromagnétique pénétrant une cible métallique.

A l'aide de ce premier modèle, nous avons mis en évidence la formation de stries dans la densité électronique dans le cas d'une polarisation linéaire du laser, et des structures en îlots (nano particules) dans le cas d'une polarisation circulaire. La période déduite est du même ordre que celle que indiquée dans la littérature. Cependant, nous avons effectué les simulations à des intensités laser faibles, insuffisantes pour avoir une éjection de la matière.

Dans un second temps, nous avons complété la modélisation en considérant les équations électromagnétiques de Maxwell. L'intensité du laser est maintenant suffisante pour avoir une éjection des électrons vers l'extérieur de la cible. Cette éjection n'est pas homogène, nous observons effectivement la formation de structures qui, à trois dimensions, forment des stries.

Pour expliquer la formation des stries sur la cible, nous adoptons le mécanisme d'explosion coulombienne des ions due à une densité d'électrons de conduction inhomogène. En effet, des régions de la cible se trouvent avec peu, voire sans nuage d'électrons. La répulsion coulombienne entre ions positifs formant le réseau cristallin, n'est plus écran-tée par la présence des électrons de conduction. A un certain moment, la répulsion l'emportera sur les liaisons atomiques. Il s'ensuivra une éjection des ions, donc de la matière, qui dupliquera la forme de la densité électronique.

L'analyse du spectre de Fourier du profil de la surface du cratère, nous indique l'existence de deux périodes principales, nous les identifions comme étant les LSFL, pour les grande période, et HSFL pour les petites.

Le mécanisme d'interférence fait appel au processus de Diffusion Raman Stimulée, qui est un processus non-linéaire du troisième ordre (en $\chi^{(3)}$), et la formation des HSFL fait appel au processus, non-linéaire aussi, de génération de seconde harmonique (du deuxième ordre). Notre modèle suppose une interaction linéaire (du premier ordre) de l'onde électromagnétique avec la matière. Sans écarter complètement ces deux mécanismes, nous pensons qu'il ne sont pas à l'origine de la formation des stries, LSFL ou HSFL.

Les valeurs calculées des périodes spatiales et leurs comportements en fonction de la longueur d'onde et de l'intensité du laser corroborent celles déterminées expérimentalement par certains auteurs.

Bien que nous ayons considéré uniquement le cas du métal, il est généralement accepté que le mécanisme d'ablation dans les semi-conducteurs et les diélectriques soit semblable à celui du métal avec préalablement une forte ionisation.

Evidemment, comme perspectives, ce modèle peut évoluer en incluant des effets que nous n'avons pas pris en compte faute de temps et de moyens de calculs, notamment les effets optiques non-linéaires et l'ionisation. L'effet du champ magnétique, négligé dans ce travail, peut être également considéré.

De plus, la preuve de l'explosion coulombienne pourrait être complétée par une simulation de dynamique moléculaire d'un cristal dont la densité des électrons de conduction est fortement diminuée. Ces perspectives dépendent des moyens de calculs qui seront mis à notre disposition.

Bibliographie

- [1] C. Rullière, *Femtosecond laser pulses : Principles and Experiments*, 2nd Ed., Springer (2005)
- [2] P. Laporte, F. Salin et S. Mottin, *Systèmes femtosecondes*, 1^{ère} École des technologies, des sources et des systèmes femtosecondes, PU Saint-Etienne (2001).
- [3] M. Bass, C. DeCusatis, J. Enoch, V. Lakshminarayanan, G. Li, C. MacDonald, V. Mahajan and E. Van Stryland, *Handbook of Optics, Volume IV : Optical Properties of Materials, Nonlinear Optics, Quantum Optics* , MacGraw Hill (2010).
- [4] D. Strickland and G. Mourou, *Opt. Commun.* 56, 219-221 (1985)
- [5] M. Birnbaum, *J. Appl. Phys.* 36, 3688 (1965)
- [6] H.M. Van Driel, J.E. Sipe and J.F. Young, *Phys. Rev. Lett.* 49, 1955 (1982)
- [7] J. Sipe, J.F. Preston and H.M. van Driel, *Phys. Rev. B* 27, 1141 (1983)
- [8] K. Okamuro, M. Hashida, Y. Miyasaka, Y. Ikuta, S. Tokita, S. Sakabe, *Phys. Rev. B* 82, 165417 (2010)
- [9] X.J. Wu, T.Q. Jia, F.L. Zhao, M. Huang, N.S. Xu, H. Kuroda, Z.Z. Xu, *Appl. Phys. A* 86, 491-495 (2007)
- [10] H.M. van Driel, J.E. Sipe and J.F. Young, *Journal of Luminescence* 30, 446 (1985)
- [11] A.M. Ozkan, A.P. Malshe, T.A. Railkar, W.D. Brown, M.D. Shirk, P.A. Molian, *Appl. Phys. Lett.* 75, 3716-3718 (1999)
- [12] Z. Ball and R. Sauerbrey, *Surface Modification with Lasers in Laser Ablation and Desorption*, edited by J.C. Miller and R.F. Haglund, Academic Press (1998)
- [13] D.C. Emmony, R.P. Howson and L.J. Willis, *Appl. Phys. Lett.* 23, 598 (1973)
- [14] A.Y. Vorobyev, V.S. Makin and Chunlei Guo, *J. Appl. Phys.* 101, 034903 (2007)

- [15] J. Bonse, M. Munz and H. Sturm, *J. Appl. Phys.* 97, 013538 (2005)
- [16] A. Borowiec and H.K. Haugen, *Appl. Phys. Lett.* 82, 4462 (2003)
- [17] J. Bonse, A. Rosenfeld and J. Krüger, *J. Appl. Phys.* 106, 104910 (2009)
- [18] T. Sarnet, M. Halbwax, R. Torres, Ph. Delaporte, M. Sentis, S. Martinuzzi, V. Vervisch, F. Torregrosa, H. Etienne, L. Roux and S. Bastide, *Commercial and Biomedical Applications of Ultrafast Lasers VIII*, Proc. SPIE vol. 6881 (2008)
- [19] M. Halbwax, T. Sarnet, Ph. Delaporte, M. Sentis, H. Etienne, F. Torregrosa, V. Vervisch, I. Perichaud and S. Martinuzzi, *Thin Solid Films* 256, 6791 (2008).
- [20] J.E. Carey, Ph.D dissertation, Harvard Univ., (2004)
- [21] D. H. Macdonald, A. Cuevas, M. Kerr, C. Samundsett, D. Ruby, S. Winderbaum and A. Leo, *Solar Energy* 76, 277 (2004)
- [22] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg, *Atom-Photon Interactions : Basic Processes and Applications*, Wiley (1998)
- [23] P. Mulser and D. Bauer, *High Power Laser-Matter Interaction*, STMP 238, Springer (2010)
- [24] F. Grossmann, *Theoretical Femtosecond Physics : Atoms and Molecules in Strong Laser Fields*, Springer(2008)
- [25] A.M. Fox, *Optical properties of solids*, Oxford University Press (2001)
- [26] R.E. Hummel, *Electronic Properties of Materials*, Springer (2010)
- [27] G. Petite, *Mécanismes fondamentaux de l'ablation laser femtoseconde en flux intermédiaire*, in *Lasers et Technologies femtosecondes*, Publications de l'Université de Saint-Etienne (2005)
- [28] S. Eliezer , *The interaction of high power lasers with plasmas*, IOP (2002)
- [29] C. Kittel, *Physique de l'état solide*, Dunod (1998)
- [30] S. Atzeni, J. Meyer-Ter-Vehn, *The physics of inertial fusion*, Oxford University Press (2004)
- [31] C.A.D. Roeser, E. Mazur, *Light-matter interactions on the femtosecond time scale*, in *Frontiers of optical spectroscopy : Investigating Extreme physical conditions with*

- advanced optical techniques*, NATO Science Series, Klumer Academic Publishers (2005).
- [32] K. Eidmann, J.Meyer-Ter-Vehn, T. Schlegel and S.Hüller, *Phys. Rev. E* 62, 1202 (2000)
 - [33] D. G. Swanson, *Plasma waves*, IOP (2003)
 - [34] R.M. More, *Atomic physics of laser-produced plasmas*, in *Handbook of plasma physics vol.3*, Elsevier (1991)
 - [35] S.Nolte, C. Momma, H.Jacobs, A.Tunnermann, B.N.Chichcov, B.Wellegehausen and H.Welling, *J. Opt. Soc. Am. B* 14, 2716 (1997)
 - [36] B.S. Luk'yanchuk, S.I. Anisimov and Y.F. Lu, *The International Symposium on Intensive Laser Action and its Applications*, Saint-Petersburg, Russia (August 2000).
 - [37] N.W. Ashcroft and N.D. Mermin, *Solid State Physics*, Harcourt College Publishers (1976)
 - [38] S. Valette, Thèse de Doctorat, ENSM de Saint-Etienne, Université Jean Monnet, France (2003)
 - [39] J. Hohlfeld. *Ultrafast electron-, lattice- and spin-dynamics in metals*, Thèse, Frei Universitat, Berlin (1998)
 - [40] J.P.Christiansen, D.E.T.F. Ashby and K.V.Roberts, *Computer Phys. Communications*, 7, 271(1974)
 - [41] R.M. More, K.H. Warren, D.A. Young and G.B. Zimmerman, *Phys.Fluids* 31, 10 (1988)
 - [42] F. Vidal, T.W. Johnston, S. Laville,O. Barthélemy, M. Chaker, B. Le Droff, J. Margot and M. Sabsabi, *Spectrochimica Acta B*, 56, 973 (2001)
 - [43] Y.T. Lee and R.M. More, *Phys. Fluids* 27 (1984)
 - [44] T.E. Itina, J. Hermann, Ph. Delaporte and M. Sentis, *Thin Solid Films* 513, 453 (2004)
 - [45] G.Petite and Ph.Daguzan, Ecole sur l'Ablation Laser, CNRS (1996)
 - [46] C.K. Birdsall and A.B. Langdon, *Plasma Physics via Computer Simulation*, Adam Hilger (1991)

- [47] R.W. Hockney and J.W. Eestwood, *Computer Simulation Using Particles*, Adam Hilger (1988).
- [48] Xin Zhao and Yung C Shin, *J. Phys. D : Appl. Phys.* 45, 105201 (2012)
- [49] Numerical Recipes, Cambridge University Press (1992)
- [50] S. Sakabe, M. Hashida, S. Tokita, S. Namba, K. Okamuro, *Phys. Rev. B* 79, 033409 (2009)
- [51] M. Djouder, T.E. Itina and O. Lamrous, *Adv. Mater. Res.* 227, 138 (2011)
- [52] M. Djouder, T.E. Itina, D. Deghiche and O. Lamrous, *Applied Surface Science* 258, 2580 (2012)
- [53] D.M. Sullivan, *Electromagnetic Simulation Using the FDTD Method*, IEEE Press (2000)
- [54] A. Taflove and S.C. Hagness, *Computational Elertodynamics : the Finite-Difference Time-Domain Method*, 2nd Ed., Artech House, (2000)
- [55] K. S. Yee, *IEEE Trans. Antennas Propagat.*, vol. 14, 302 (1966)
- [56] J.-P. Bérenger, *J. Comput. Phys.* 114, 185 (1994).
- [57] Min Huang, Fuli Zhao, Ya Cheng, Ningsheg Xu and Zhizhan Xu, *Phys. Rev. B* 79 (2009)
- [58] B. Tan and K. Vankatakrisnan, *J. Micromech. Microeng.* 16 (2006)
- [59] D. Dufft, A. Rosenfeld, S.K. Das, R. Grunnwald and J. Bonse, *J. Appl. Phys.* 105 (2009)

MODELISATION DE LA FORMATION DES NANOSTRUCTURES OBTENUES PAR ABLATION LASER EN REGIME FEMTOSECONDE

Par
Madjid DJOUDER

Résumé

Cette thèse se focalise sur la texturation à l'échelle submicronique de surfaces métalliques créée par ablation laser femtoseconde qui présente de nombreuses applications dans le domaine des nanotechnologies. En général, les formations de nanostructures sur une surface irradiée par des lasers à impulsions courtes ont été observées expérimentalement depuis 1965, et sont généralement qualifiés de structures de surface périodiques induites par laser (en anglais LIPSS). Les modèles théoriques existants ne décrivent pas l'origine, ni l'évolution de ces nanostructures de façon satisfaisante. C'est la raison pour laquelle de nouvelles modélisations sont nécessaires pour mieux comprendre leur formation. Dans cette thèse, la méthode dite Particule In Cell (PIC) est utilisée pour modéliser la formation de LIPSS sur une surface métallique. Le mécanisme d'explosion de Coulomb est proposé en tant que mécanisme responsable de la formation de ces nanostructures. L'influence des paramètres du laser sur leur formation (morphologie, taille, période, ...) et des comparaisons avec les résultats de la littérature sont rapportés.

Mots-clés : femtoseconde, nanostructure, ablation, PIC, stries, FDTD.

Abstract

This thesis focuses on surface texturing on sub-micron scale created by femtosecond laser ablation that has various applications in nanotechnology. In general, the formations of ripples on a surface irradiated by short pulse lasers has been observed experimentally since 1965, and are usually referred to as Laser Induced Periodic Surface Structures (LIPSS). Existing theoretical models do not describe the origin, nor growth of the ripples satisfactorily. That is why new models are needed in the investigation of ripple formation. In this thesis, using Particle In Cell method (PIC), we study the development of LIPSS as a result of femtosecond laser pulses on a surface of metal. The Coulomb explosion mechanism is proposed as a mechanism responsible for the formation of the nano-structures. The influence of laser parameters on ripples formation (morphology, size, periodicity,...) and comparisons with results from the literature were reported.

Keywords: femtoseconde, nanostructure, ablation, PIC, ripples, FDTD.