



UNIVERSITE MOULOUD MAMMERI DE TIZI-OUZOU

FACULTE DES SCIENCES

DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

CENTRE DE DEVELOPPEMENT DES TECHNOLOGIES AVANCEES



## Mémoire de Master

SPECIALITE PHYSIQUE

*Option :*

*Physique de l'Interaction Rayonnement Matière*

**Thème :**

---

**MODELE A DEUX TEMPERATURES POUR  
L'ETUDE DE L'ABLATION DU MOLYBDENE PAR  
IMPULSION LASER FEMTOSECONDE**

---

Proposé et dirigé par :

**Mr. El Hachemi AMARA**  
Directeur de recherche-CDTA

Présenté par :

**Mlle. Fatma BIRECHE**

Soutenu le 05-09-2015 devant le jury:

**Mr. Mourad ZEMIRLI**

**Professeur**

**UMMTO**

**President**

**Mr. Madjid DJOUDER**

**MCB**

**UMMTO**

**Examineur**

*2014-2015*

## **Remerciement**

*C'est avec émotion que je remercie le dieu tout puissant, qui sans sa bénédiction, ce modeste travail n'aurai jamais vu le jour...*

*La préparation minutieuse et méticuleuse de ce travail réalisé au sein du Centre de Développement des Technologies Avancées (CDTA) d'Alger, a été développé avec l'aide appréciable de mon encadreur en l'occurrence Monsieur El-Hachemi AMARA, Directeur de recherche au CDTA, que je tiens à remercier tous particulièrement, d'avoir proposé un tel sujet intéressant, grâce à qui j'ai en effet pu effectuer une expérience enrichissante sur tous les plans. Je le remercie aussi, pour m'avoir chaleureusement accueilli dans son équipe de recherche, pour sa disponibilité et ses nombreux conseils. Sa patience et son altruisme seront pour moi un modèle à suivre.*

*Je voudrais remercier également Monsieur Mourad ZEMIRLI, Professeur à l'UMMTO, pour m'avoir fait l'honneur de présider le jury de soutenance, sans oublier d'exprimer ma gratitude à Monsieur Madjid DJOUDER, Maître de conférences classe B à l'UMMTO, pour m'avoir fait l'honneur de juger mon travail en sa qualité de membre du jury.*

*Mes remerciements s'adressent également à tous les membres de l'équipe Traitement des Matériaux par Laser du CDTA, pour leur gentillesse, leur bienveillance et leur hospitalité, avec lesquels je me suis familiarisée.*

*Je tiens à exprimer en outre ma reconnaissance et ma gratitude pour mes proches de Baba-Hassen(Alger) pour m'avoir accueilli chez eux, et prise en charge tous au long de ce stage.*

*Je n'oublie pas mes camarades et amis, avec lesquels j'ai partagé les meilleurs moments durant mon cursus, mais aussi les moments les plus difficiles, qui resteront gravés dans le livre des souvenirs.*

*Enfin, je reviens à la source de mon existence, à mes chers parents, que je gratifie d'abnégation et de dévouement ; que je remercie d'avoir imprégné en moi l'importance de l'éducation et du savoir, et de m'apprendre que le choix le plus difficile est souvent le plus aboutissant. J'espère simplement vous procurer un peu de satisfaction et de fierté par cet aboutissement personnel, qui n'est au fond qu'une étape d'une grande aventure : la vie.*

*Je voudrais aussi ouvrir une parenthèse pour remercier toutes ma famille qui m'a toujours soutenue, encouragée et orientée dans le droit chemin.*

# *Dédicacé*

*A mes parents,  
Saïd et Malika*

*A mon frère et sa femme*

*A mes sœurs*

*A toutes la famille*

*A mes amis*



# Table des matières

<b>INTRODUCTION GENERALE</b> .....	3
 <b>CHAPITRE I : INTERACTION DES LASERS AVEC LES METAUX</b>	
I.1 Introduction.....	6
I.2 Généralités.....	6
I.2.1 Notions sur le Molybdène .....	6
I.2.2 Impulsion laser ultra-courte .....	7
• <i>Les lasers</i> .....	7
• <i>Laser ultra-court</i> .....	8
• <i>Génération d'une impulsion laser femtoseconde</i> .....	8
I.3 Ablation laser d'une cible métallique .....	9
I.3.1 Interaction d'un laser avec un solide .....	9
I.3.2 Interaction d'un laser avec un métal.....	11
• <i>Structure d'un métal</i> .....	11
• <i>Effet thermique</i> .....	11
• <i>Equation de la chaleur</i> .....	12
I.3.3 Réponse d'un métal à une irradiation laser de différentes durées d'impulsion.....	12
I.3.4 Avantage des lasers femtoseconde dans le traitement des matériaux.....	15
I.4 Conclusion.....	15
 <b>CHAPITRE II : MODELE A DEUX TEMPERATURES DE L'INTERACTION D'UN LASER FEMTOSECONDE AVEC UN METAL</b>	
II.1 Introduction.....	17
II.2 Fondement du modèle à 2T.....	17
II.2.1 Phénomènes d'absorptions.....	18
• <i>Absorption multiphotonique</i> .....	19
• <i>Absorption à deux photons</i> .....	20
II.2.2 Phénomènes de relaxation.....	20
• <i>Relaxations radiatives</i> .....	20
• <i>Relaxation par collisions électrons-électrons</i> .....	21
• <i>Relaxation par collisions électrons-phonons</i> .....	21
II.3 Processus d'irradiation.....	22
II.3.1 L'ablation laser femtoseconde.....	22
II.3.2 Effet non-thermique.....	24
II.3.3 Formation de plasma et modification de surface.....	24

• <i>Formation du plasma</i> .....	24
• <i>Modification de surface</i> .....	25
II.4 Système à résoudre.....	27
II.4.1 Capacité calorifique.....	28
II.4.2 Conduction thermique.....	28
II.4.3 La constante de couplage.....	29
II.4.4 Le terme source.....	29
• <i>Profondeur de pénétration optique</i> .....	29
• <i>Profondeur de pénétration balistique</i> .....	30
II.5 Conclusion.....	30
<b>CHAPITRE III : TRAITEMENT NUMERIQUE</b>	
III.1 Introduction.....	32
III.2 Présentation du code de calcul.....	32
III.2.1 Préprocesseur Gambit.....	32
III.2.2 Processeur Fluent.....	33
• <i>Les UDFs</i> .....	34
• <i>La méthode VOF</i> .....	34
III.2.3 Discrétisation des équations par la méthode des volumes finis.....	35
III.2.4 Conditions initiales et conditions aux limites.....	35
III.3 Calculs et résultats.....	36
III.3.1 Conditions opératoires.....	36
• <i>Le faisceau laser</i> .....	36
• <i>L'échantillon traité</i> .....	36
• <i>L'environnement</i> .....	36
III.3.2 Géométrie du problème.....	37
III.3.3 Application du pulse laser.....	38
III.3.4 Après extinction du pulse laser.....	40
III.4 Conclusion.....	41
<b>CONCLUSION GENERALE</b> .....	42
<b>BIBLIOGRAPHIE</b> .....	44

## Introduction générale

La structuration des surfaces métalliques par laser est une technologie qui se développe rapidement vu les énormes potentialités et possibilités offertes par la miniaturisation pour de nombreuses applications.

En effet, beaucoup de propriétés matérielles peuvent être modifiées en agissant sur la topographie superficielle, par exemple, les caractéristiques optiques, tribologiques, d'adhésion, chimiques, etc., peuvent être contrôlées en réalisant de façon adéquate les structures de surface pour les faire correspondre au besoin d'une application spécifique.

L'ablation de matière par impulsions laser ultracourtes permet de contrôler ces caractéristiques à l'échelle micrométrique, voire nanométrique.

L'effet de la propagation de la chaleur dans des conditions opératoires, où sont utilisées des énergies électromagnétiques délivrées en un temps ultrarapide, fait que la réponse à l'absorption de l'énergie incidente par la matière se fait de façon complètement différente par rapport à ce qui est rencontré communément dans les procédés de chauffage classique.

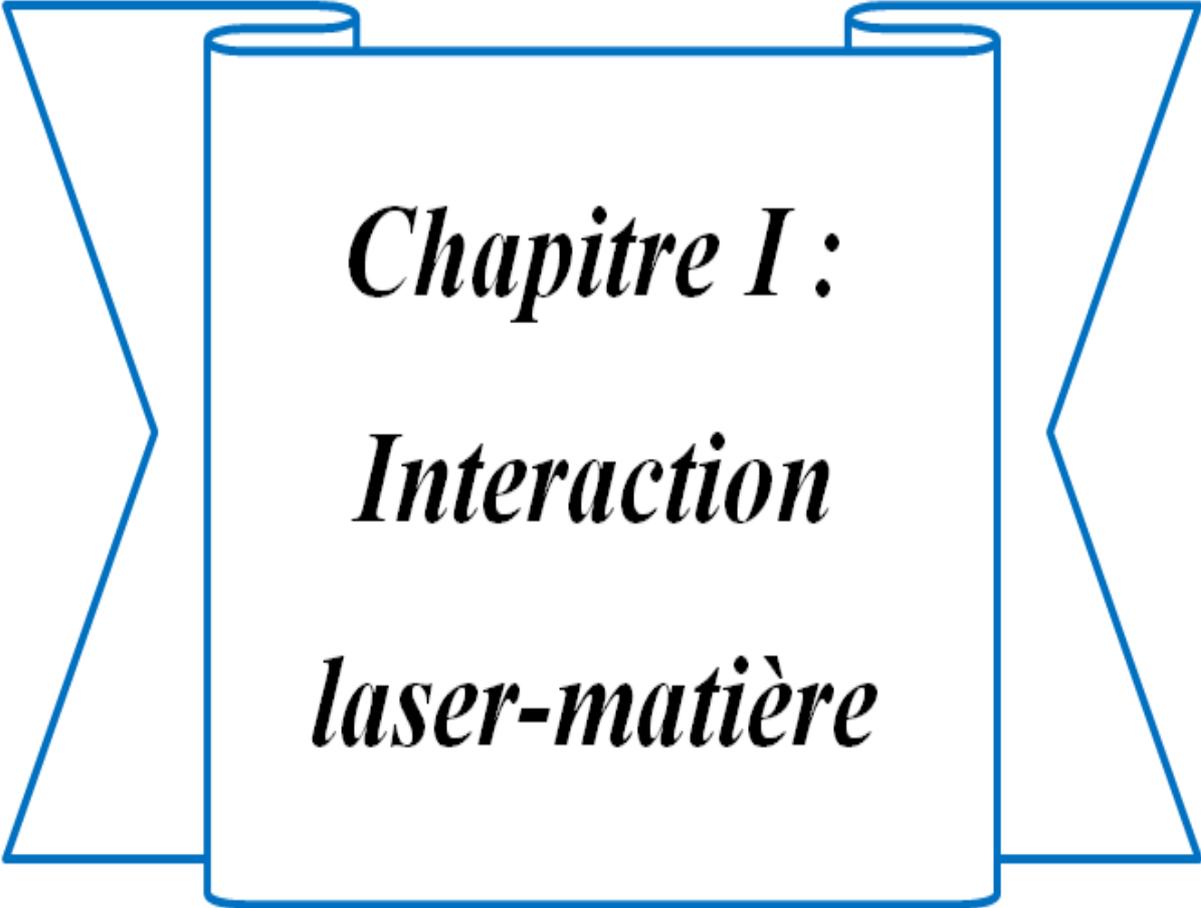
En une durée extrêmement courte, de l'ordre de la centaine de femtoseconde ( $1\text{fs} = 10^{-15}\text{s}$ ) la matière voit l'énergie déposée sur une longueur comparable à l'épaisseur de pénétration optique qui est de l'ordre d'une dizaine de nanomètres pour plusieurs métaux. On considère à cette échelle de temps que le matériau traité est divisé en deux sous-systèmes dans le cas des métaux : le réseau ionique composant l'essentiel de la matière, et le gaz électronique composé d'électrons libres ou liés. A l'échelle de temps d'un pulse laser d'une durée de quelques centaines de femtosecondes, seuls les électrons répondent à la sollicitation électromagnétique, et ce sont les électrons qui absorbent l'énergie laser alors que les ions du réseau n'ont pas le temps de ressentir l'ébranlement électromagnétique et restent non perturbés. Ce sont les électrons qui redistribuent dans le réseau l'énergie gagnée bien après la fin du pulse laser.

Dans le cadre de la préparation de ce mémoire de Master, nous allons nous intéresser à l'interaction laser-métal en régime femtoseconde. A cet effet, notre étude est développée autour du modèle à deux températures, dans lequel sont pris en compte l'absorption du rayonnement laser par le gaz d'électrons en premier lieu puis le transfert d'énergie des électrons vers le réseau d'ions constituant le matériau principal, où apparaîtront les effets

thermiques. L'étude portera sur l'interaction d'un laser délivrant des impulsions ultracourtes de l'ordre du femtoseconde avec le Molybdène.

Le mémoire est composé de trois chapitres, où nous donnerons dans le premier chapitre des généralités sur le molybdène et sur les lasers pulsés, puis un aperçu sur l'ablation laser et l'interaction laser-métal. Le second chapitre est consacré à la présentation du modèle à deux températures, où seront exposés les fondements, puis nous parlerons des phénomènes d'absorption de l'énergie laser et de la relaxation. Nous développerons l'ablation par laser femtoseconde, et les effets en résultant, notamment pour la modification de surface. Nous présenterons à la fin du chapitre le modèle à résoudre avec les paramètres physiques les plus importants, dont le terme source et la constante de couplage électrons-phonons.

Au dernier chapitre, l'application du modèle à deux températures sera mise en œuvre pour l'étude de l'interaction d'un laser Nd-YAG pulsé, dont la durée du pulse est de 290 fs, avec un matériau métallique qui est le molybdène. Nous présenterons au préalable le code de calcul utilisé, consistant en le Préprocesseur Gambit, le processeur Fluent, les procédures UDF développées, et la méthode de suivi d'interface *Volume Of Fluid* (VOF) utilisés dans nos modélisations numériques par la méthode des volumes finis. Nous donnerons dans ce chapitre les résultats montrant l'évolution du champ de température pendant l'absorption de l'énergie du pulse laser par le gaz d'électrons, puis celui de l'évolution du champ de température lors de relaxation par redistribution de l'énergie électronique aux ions métalliques du réseau.



*Chapitre I :*  
*Interaction*  
*laser-matière*

## I.1 Introduction

L'utilisation du rayonnement laser comme source de vaporisation des matériaux a été appliqué pour la première fois dans les années soixante-dix. Depuis, le domaine de l'interaction laser-matière s'est beaucoup plus développé durant ces quarante dernières années ; jusqu'à devenir aujourd'hui une branche à part entière de la physique. Parmi les pionniers qui ont contribué à l'étude de l'interaction laser-matière, nous retrouvons déjà dans les années 70 un modèle proposé par Ready [1], puis repris ensuite par Von Allmen en 1976 [2].

Avant de se prolonger dans la description du processus de l'interaction laser-matière, il est utile de parler brièvement dans ce chapitre du matériau qui constitue la pièce traitée dans notre étude, et la source de rayonnement qui nous intéresse, qui est le laser femtoseconde, où l'on discutera du principe de fonctionnement. Dans la seconde partie de ce chapitre, nous donnerons une brève introduction des principes fondamentaux qui régissent la propagation et l'absorption du rayonnement laser, ainsi que la réponse du matériau irradié.

## I.2 Généralités

### I.2.1 Notions sur le Molybdène

Longtemps considéré comme un élément rare, où son abondance dans la croûte terrestre est de 1.2 ppm, le Molybdène est un métal de transition de symbole **Mo**, de numéro atomique 42 et de masse atomique 95.94. Il se situe sur la cinquième période dans le groupe VIB du tableau périodique de Mendeleïev, il est de couleur blanc argenté et de structure cristalline cubique centré [3]. Dans la nature, on le retrouve dans : des minerais (molybdénite, powellite et wulfénite)<sup>1</sup>, des roches volcanique, des calcaires, etc.



Figure<sup>2</sup> I.1 : Le Molybdène à l'état naturel.

<sup>1</sup> Molybdénite:  $\text{MoS}_2$ , powellite:  $\text{CaMoO}_4$ , Wulfénite:  $\text{PbMoO}_4$

<sup>2</sup><http://www.societechimiquedefrance.fr/produit-du-jour/molybdene.html>

Il fut découvert en 1778, lorsque Carl Wilhelm Scheele<sup>3</sup> a provoqué la séparation des composants du Molybdène de ceux du graphite et du plomb, qui ont toujours été confondus, d'où son nom grec « *molybdos* » qui signifie « *ressemble au plomb* ». Toutefois, celui-ci est estimé comme un matériau exceptionnel qui peut répondre même aux exigences les plus délicates. En effet, grâce à ces propriétés mécaniques et thermiques :

- matériaux réfractaires, malléables<sup>4</sup> et dur,
- un point de fusion très élevé 2625°C,
- un point d'ébullition à 4639 °C,
- un coefficient de dilatation faible,
- une conductivité thermique élevée (138 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup>),
- un module d'élasticité élevé,
- une excellente résistance à la corrosion<sup>5</sup> ;

Font que ces alliages sont exploités pour différents usages notamment les infrastructures énergétiques ou de transport tels que l'automobile, l'aérien, les substrats pour dépôts superficiels à chaud etc... [3]

## I.2.2 Impulsion laser ultra-courte

- *Les lasers*

Les lettres L.A.S.E.R constituent l'acronyme en anglais de *Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation*, qui a pour signification : Amplification de la Lumière par Emission Stimulée de Rayonnement [4]. Le laser est une invention majeure du vingtième siècle, survenue au début des années soixante. La première émission laser a été obtenue par Théodore Maiman en utilisant un cristal à rubis comme milieu actif ou amplificateur.

En effet, fondamentalement, un dispositif laser est constitué d'un milieu amplificateur placé entre deux miroirs, d'axe identique, dont l'ensemble constitue ce qui est appelé une cavité résonante. Une source de lumière fournie par exemple par des lampes flash provoque l'émission stimulée<sup>6</sup> par des va-et-vient dans la cavité provoquant, en passant par le milieu amplificateur, la génération d'un grand nombre de photons de même longueur d'onde, qui sera amplifiée et donnera lieu à une onde électromagnétique, monochromatique, cohérente spatialement et temporellement. Aussi, l'onde électromagnétique issue est essentiellement caractérisée par sa directionnalité, qui constitue la particularité du faisceau laser [4].

---

<sup>3</sup>Chimiste suédois (1742-1786), connu pour avoir découvert un nombre d'éléments et composés chimiques.

<sup>4</sup> Doté de la propriété de se laisser déformer, marteler, réduire en feuilles, ou en lames sans se casser.

<sup>5</sup>L'altération d'un matériau par réaction chimique avec un oxydant.

<sup>6</sup>Elle se manifeste par la condition de création d'une inversion de population [4].



Figure I.2 : Principe de fonctionnement d'un laser.

On peut séparer les différents types de lasers par rapport à leurs modes de fonctionnement : continus ou impulsionnels. Selon la nature du milieu amplificateur, nous pouvons citer :

- les lasers à solide (laser à rubis, le Nd-YAG<sup>7</sup>),
- les lasers à gaz (laser hélium-néon, laser à argon ionisé),
- les lasers à colorants,
- les lasers à excimères<sup>8</sup>
- les lasers chimiques.
- Les lasers à semi-conducteur

Parmi ces lasers, une classe bien particulière produit des impulsions extrêmement courtes, appelés les *lasers ultra-courts*.

- **Laser ultra-court**

Les impulsions ultra-courtes sont issues de la modification des propriétés et des constituants des systèmes laser ordinaire [5]<sup>9</sup>, Le terme ultra-court, ou ultra-bref, ou encore ultra-rapide indique généralement le domaine de durée d'impulsion lorsqu'il s'étend de la picoseconde ( $10^{-12}$  s)[6]<sup>10</sup>, à quelques centaines de femtosecondes ( $10^{-15}$  s). Par ailleurs, la mise en œuvre d'impulsions attoseconde ( $10^{-18}$ s) a déjà été démontrée en laboratoire [5].

- **Génération d'une impulsion laser femtoseconde**

L'obtention d'une impulsion de durée courte et de forte puissance requiert le passage par deux étapes : produire des impulsions courtes ; puis les amplifier. Un faisceau laser femtoseconde est doté d'un amplificateur émettant dans une très large bande de l'ordre de quelques centaines de nanomètres, avec un mécanisme de blocage de modes, et une compensation de la dispersion. Comme il est bien connu, dans une cavité laser 'ordinaire',

<sup>7</sup>Neodymium-doped yttrium aluminium garnet (Nd: Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub>).

<sup>8</sup>Dimère qui n'est stable qu'à l'état excité et se dissocie à l'état fondamental.

<sup>9</sup>Page 15-18.

<sup>10</sup>Page 9.

plusieurs modes de phases aléatoires et d'amplitudes irrégulières peuvent se propager ; ces modes étant réunis produisent un rayonnement laser. Ainsi par le processus de **blocage de mode**<sup>11</sup> (*mode-locking*), ces différents modes seront mis en phase à un instant bien déterminé, ceci se traduit par un train d'impulsions extrêmement fines ; en effet, la superposition de plusieurs harmoniques de phases, de fréquences régulièrement espacées, donne naissance à un train d'impulsions d'autant plus fine et plus intense qu'il y a de modes (*figure I.3*). Par la suite, on procède à l'élimination du bruit indésirable entre deux pics successifs [6]. Ainsi, on ne peut amplifier que les impulsions courtes, et ce sont elles qui sont émises : c'est le verrouillage des modes [7].

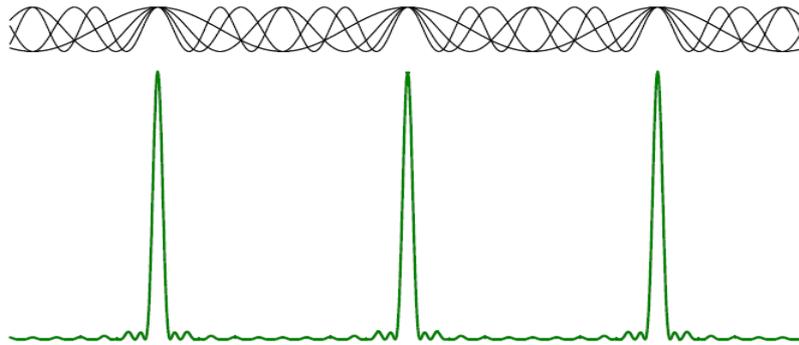


Figure I.3 : Exemple pour huit modes en phase. [6]

## I.3 Ablation laser d'une cible métallique

### I.3.1 Interaction d'un laser avec un solide

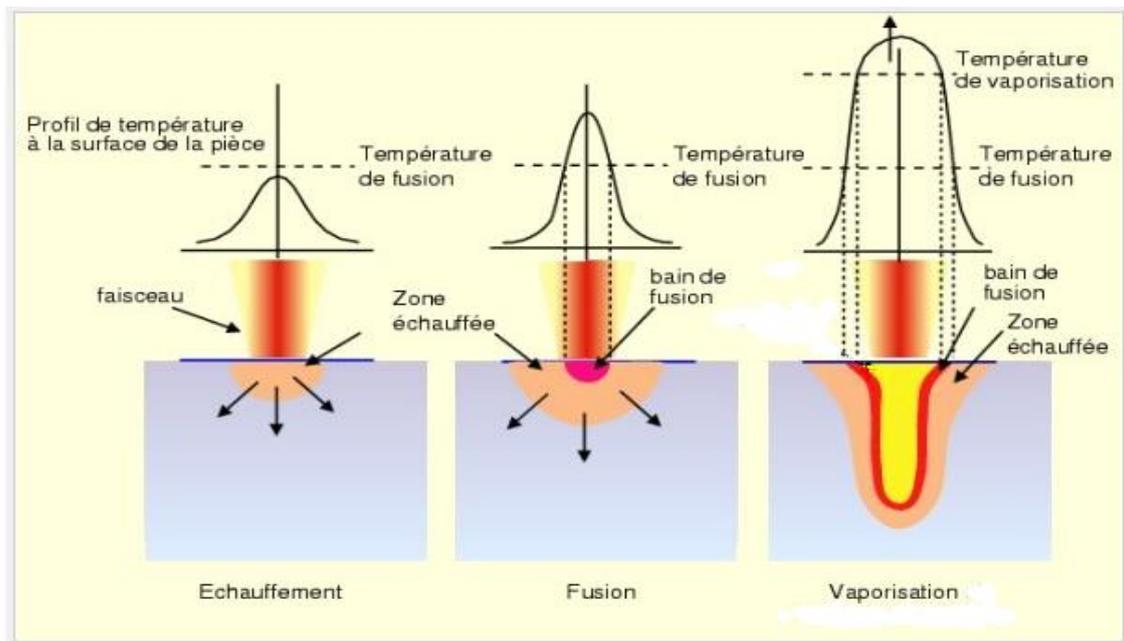
L'ablation laser est une technique d'enlèvement de matière à partir d'un substrat par un faisceau laser sans endommager la structure du matériau. Ce mécanisme est d'un grand intérêt de par ses nombreux usages. En effet, les interactions spécifiques d'une lumière laser avec un matériau peuvent conduire à des changements permanents des propriétés du matériau, qui ne peuvent être obtenus facilement par d'autres procédés [8].

Le principe du processus d'interaction laser-matière se résume à concentrer un faisceau laser de puissance donnée sur une cible, où l'énergie lumineuse absorbée sera alors convertie en énergie thermique à la surface du matériau. On obtient ainsi une zone restreinte de la cible qui sera soumise à un chauffage, ce qui peut conduire à la fusion très localisée d'une couche fine du solide, une fois que ce dernier atteint le seuil d'ablation<sup>12</sup>. Pour les métaux, ce seuil est compris pour des fluences entre 1 et 10 J/cm<sup>2</sup>, pour les isolants il est

<sup>11</sup> Il existe deux méthodes passive de blocage de mode : blocage de mode par un absorbant saturable et par composante non-linéaire.

<sup>12</sup> Il correspond à la situation où la température est égale à la température d'ébullition.

situé entre 0.5 et 2 J/cm<sup>2</sup>, et pour les matériaux organiques il est entre 0.1 et 1 J/cm<sup>2</sup> [8]. Lors de l'ablation laser, le matériau se vaporise quasi-instantanément (*figure I.4*). Nous pouvons observer la formation d'un plasma qui résulte de l'interaction de la matière évaporée avec le faisceau laser, et par la suite son expansion dans le milieu ambiant [1]<sup>13</sup>. Ce mécanisme diffère selon les caractéristiques du faisceau laser à savoir : la fluence, la longueur d'onde, la durée et la puissance de l'impulsion ainsi que le diamètre d'impact du faisceau sur la cible.



**Figure I.4**<sup>14</sup> : Mécanisme de l'interaction laser-matière.

L'absorption, le chauffage, la fusion, la vaporisation, l'effet « piston », la formation du plasma, la convection Maragoni, et l'instabilité Kevin-Helmholtz sont quelques aspects de l'interaction faisceau laser-matière [9] qui peuvent induire des modifications de la chimie locale, de la structure locale du cristal et de la morphologie locale [8].

Etant donné que les phénomènes mis en jeu dans l'interaction rayonnement laser-matière sont complexes et variés, il est extrêmement difficile de les inclure dans une étude unique. Nous les introduisons dans tous ce qui suit en termes d'énergie absorbée et de transfert de chaleur, qui sont les mécanismes essentiels régissant l'interaction laser-matière.

Les processus élémentaires d'absorption d'un rayonnement par la matière sont les mêmes dans tous les types de matériaux. Cependant, ce qui rend leur comportement différent, c'est la prédominance de certains de ces processus par rapport à d'autres [6]<sup>15</sup>. Par exemple,

<sup>13</sup>Page 80-83

<sup>14</sup><http://www.a2l-laser.com/index.php?page=interaction>

<sup>15</sup>Page 29.

dans les diélectriques et semi-conducteurs, où la densité des électrons libres est très faible, un mécanisme complexe d'absorption est régi par le phénomène prédominant d'excitation par résonance. Celle-ci permet la création des porteurs libres, suite à l'ionisation. Ainsi l'énergie laser est absorbée par les électrons libres en raison du mécanisme d'absorption par Bremsstrahlung inverse. Aussi, une autre partie significative sera absorbée par les états localisés dans le gap (défauts et impuretés) [10,9]. En ce qui concerne les métaux, le processus est pratiquement différent.

## I.4 Interaction d'un laser avec un métal

- **Structure d'un métal**

Un métal est un solide cristallin constitué de deux sous-systèmes : un réseau d'ions quasi-fixe formant une structure périodique localisée, et un gaz d'électrons libres faiblement liés, exhibant une réponse dynamique ultra-rapide et accessible aux excitations dans le domaine optique et infrarouge [11].

- **Effet thermique**

Dans les métaux, le niveau d'énergie potentielle des électrons libres du métal se situe dans la bande de conduction. Lors de son irradiation, la composante électrique de l'onde électromagnétique provoque l'oscillation des électrons libres et leur collision dans la bande de conduction, cela veut dire que l'énergie portée par le rayonnement est directement transmise au nuage très dense d'électrons libres. Ainsi, pour la plupart des métaux une grande partie de l'énergie absorbée, est convertie en énergie thermique par l'interaction électron-phonon en un temps de l'ordre de  $10^{-10}$  à  $10^{-12}$  s, ce qui correspond à des durées plus courtes que la durée d'un pulse laser dans la nanoseconde. De tels procédés sont caractérisés par le mécanisme photo-thermique<sup>16</sup>[8].

La nature de l'ablation dépend aussi du type du métal. En effet, la densité d'énergie au seuil d'ablation dépend de l'énergie de cohésion d'un métal, mais aussi de sa conductivité thermique. De fait, les valeurs les plus faibles sont obtenues pour les métaux dont les énergies sont inférieures à 3 eV par atome tels que le *Cd* et le *Pb*, les métaux de transitions (*Ni*, *Fe*, *Co*) ainsi que les métaux nobles (*Ag*, *Au*) présentent des énergies seuils intermédiaires et enfin les métaux réfractaires (*W*, *Ta*, *Mo*) ont des densités d'énergie seuil maximum (supérieure à 6 eV par atome) car ils ont des énergies de liaison les plus élevées. De plus, une fois le seuil d'ablation atteint, le fait d'augmenter la densité d'énergie ne fait que surchauffer la région

---

<sup>16</sup>C'est le cas où l'excitation laser est longue par rapport au temps de thermalisation.

ablatée [6], ceci explique que le volume de la zone affectée thermiquement lors de l'irradiation est limité.

- **Equation de la chaleur**

L'irradiation d'un matériau en général et d'un métal en particulier par un faisceau laser est accompagnée d'un transfert d'énergie et d'un écoulement de chaleur décrit par l'équation de transfert de chaleur. Cette dernière définit l'évolution spatiale et temporelle du champ de température dans le solide.

En 1807, Jean Baptiste Joseph Fourier <sup>17</sup> propose une loi valable en tous points d'un volume qui relie la densité du flux  $\vec{\varphi}$  ( $Wm^{-2}$ ) à la conductivité thermique  $k(Wm^{-1}K^{-1})$  et au gradient local du champ de température  $T(x, y, z, t)$  [12] :

$$\vec{\varphi} = -k \cdot \vec{\nabla} T \quad (I.1)$$

La présence du signe (-) dans la formulation signifie que le flux de chaleur s'oppose au gradient de température et qu'il n'existe qu'en présence de ce gradient.

On partant de cette loi, Fourier a établi une équation aux dérivées partielles parabolique, qui régit les transferts de chaleur en régime variable des températures, et a abouti ainsi à l'équation général de transfert de chaleur [13] <sup>18</sup> donnée par :

$$\rho c_p \frac{\partial T}{\partial t} = \vec{\nabla} (k \cdot \vec{\nabla} T) + S \quad (I.2)$$

Où  $\rho c_p$  est la chaleur spécifique volumique du matériau, et  $S$  est une source de chaleur qui dans notre cas peut être assimilée à l'effet d'un faisceau laser. Cette équation traduit le fait que la variation temporelle de la température dans le matériau n'est que l'échange de chaleur par convection à la surface ajoutée à la création de chaleur.

### **I.4.1 Réponse d'un métal à une irradiation laser de différentes durées d'impulsion**

En dépit de l'influence de l'énergie et des divers paramètres, la réaction d'un métal face à un faisceau laser dépend essentiellement de la durée d'impulsion de ce dernier. La mise

<sup>17</sup>Jean Baptiste Joseph Fourier (1768-1830), mathématicien et physicien français.

<sup>18</sup> Page 17-18

en parallèle des régimes d'impulsion continue, nanoseconde, picoseconde et femtoseconde est portée sur les deux aspects thermique et dynamique de l'interaction du laser avec la matière : D'un point de vue thermique, l'impact du faisceau laser sur le matériau n'est plus le même pour les différents régimes d'impulsion cités précédemment (figure I.5).

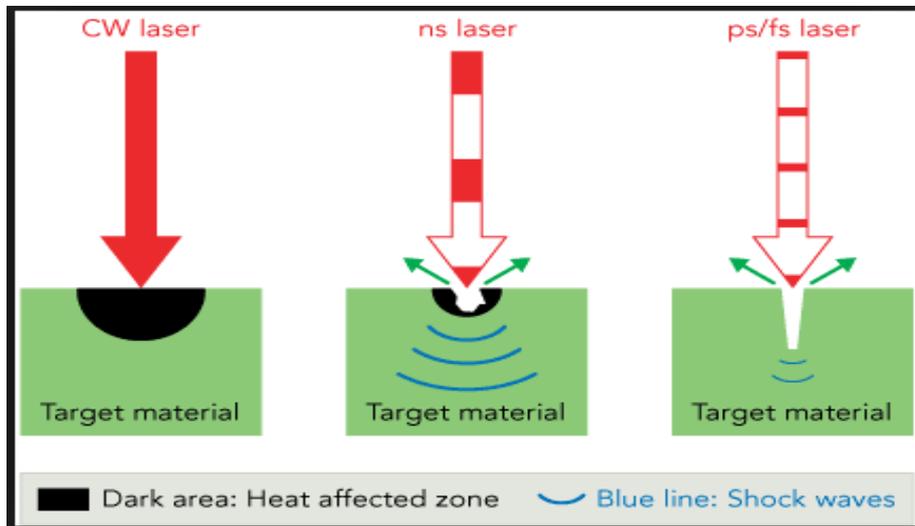
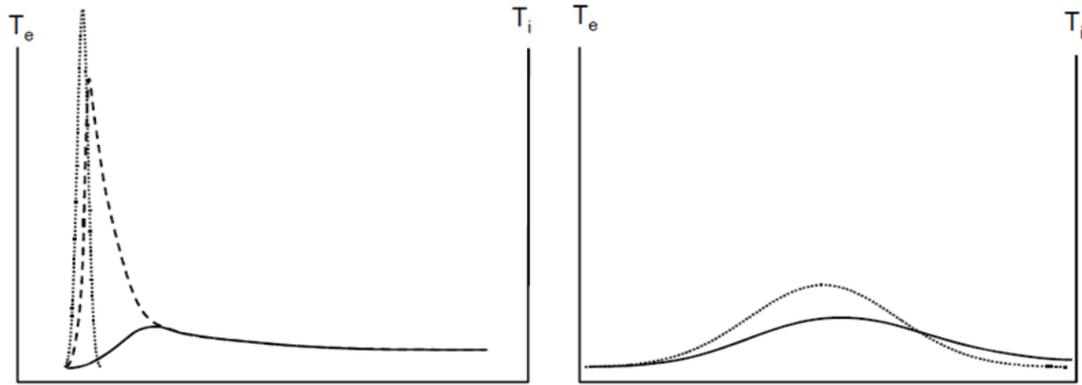


Figure I.5: Phénomènes de base de l'irradiation d'un matériau à différentes durées d'action du laser [14].

Pour une énergie laser incidente donnée, plus la durée d'impulsion est grande, moins la température atteinte sera importante ; et plus la profondeur chauffée sera grande, si l'énergie contenue dans le faisceau est suffisante pour entraîner la vaporisation ; l'épaisseur vaporisée augmente avec la durée d'impulsion, par contre si l'énergie est insuffisante pour entretenir la vaporisation, elle sera perdue par conduction à l'intérieur du matériau traité. Les pertes par conduction sont d'autant plus importantes que le milieu est bon conducteur. Inversement, si la durée d'impulsion est petite, la température atteinte par la surface est importante et la profondeur chauffée est réduite [15].

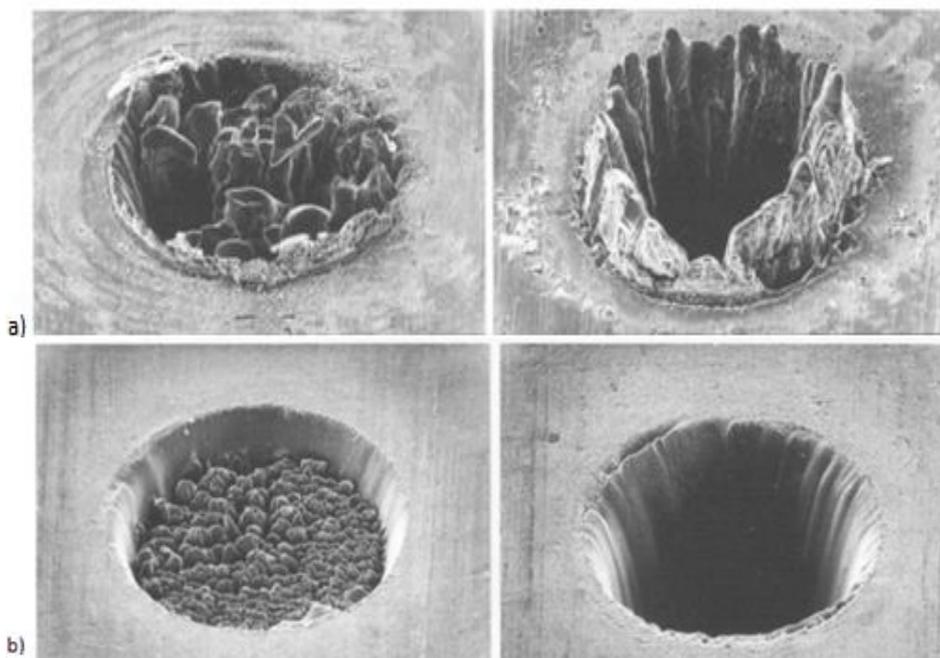
Suite aux études effectuées à l'échelle d'une impulsion subpicoseconde ( $<10^{-12}$ s) ; et d'une impulsion nanoseconde ( $10^{-9}$ s), on se rend compte de la différence du comportement des deux cas extrêmes d'impulsion courte et longue, où le résultat est illustré de manière qualitative dans la figure ci-dessous [16] :



**Figure I.6 :** Evolution du champ thermique pour un matériau soumis (à gauche) à une impulsion ultracourte (à droite) à une impulsion longue. En pointillé : impulsion laser, tirets : température électronique, traits pleins : température de réseau.

Pour l'impulsion ultra courte, on observe d'abord une phase de chauffage électronique ; suivie du refroidissement des électrons pendant que la température du réseau augmente. Dans le cas de l'impulsion longue, la température électronique et la température du réseau évoluent simultanément.

D'un point de vue dynamique, si l'intensité du rayonnement est suffisante, une partie du métal est éjectée sous forme de plasma, d'ions et d'agrégats, un cratère se forme à la surface de la cible avec une profondeur et une géométrie qui dépend de la forme du faisceau [6] (figure I.7 a, b). Sur la figure on note la différence entre les trous percés dans une feuille métallique épaisse (dans le vide) avec des impulsions laser à deux régimes d'impulsions différents : femtoseconde et nanoseconde.



**Figure I.7 :** Trous percés par ablation laser : **a)** avec une impulsion nanoseconde, **b)** avec une impulsion femtoseconde [17].

Dans le cas d'une ablation avec des impulsions nanoseconde (*figure I.7 a*), l'onde thermique<sup>19</sup> a suffisamment de temps pour se propager dans le matériau métallique et produire une fusion relativement importante, où la présence d'une phase liquide conduit à un processus de perçage instable. Dans ce cas, le matériau de la cible est enlevé à la fois dans une phase vapeur et dans une phase liquide, le processus de vaporisation produit une pression de recul qui expulse le liquide. Par contre, dans le cas de l'impulsion femtoseconde (*figure I.7 b*), il n'y a aucune trace de la matière en fusion ; un anneau net et sans bavure est obtenu.

## I.4.2 Avantage des lasers femtoseconde dans le traitement des matériaux

L'usage des lasers à impulsions ultra-courtes dans le domaine du traitement des matériaux a fait l'objet d'un intérêt fortement grandissant au cours des dernières années, et cela grâce à ses caractéristiques avantageuses à l'égard des autres lasers. Nous citons par exemple le fait :

- ✓ Qu'ils favorisent les processus intrinsèques par rapport aux processus résultants de la présence des défauts notamment dans les matériaux isolants. Cela est dû au fait qu'on peut travailler à des rayonnements plus élevées sans pour autant atteindre le seuil de claquage du matériau [16].
- ✓ Que le laser femtoseconde vaporise directement le matériau, ce qui offre un résultat propre et précis [7].
- ✓ Que l'irradiation avec une impulsion ultra-courte permet de séparer la phase de l'interaction laser-matière de la phase d'expansion thermodynamique. Ce qui permet d'affirmer que dans ce cas on se situe purement dans une interaction laser-solide [16].
- ✓ Que l'emploi d'une impulsion femtoseconde peut donner lieu à une situation de déséquilibre thermique notable entre les électrons du matériau et le réseau.

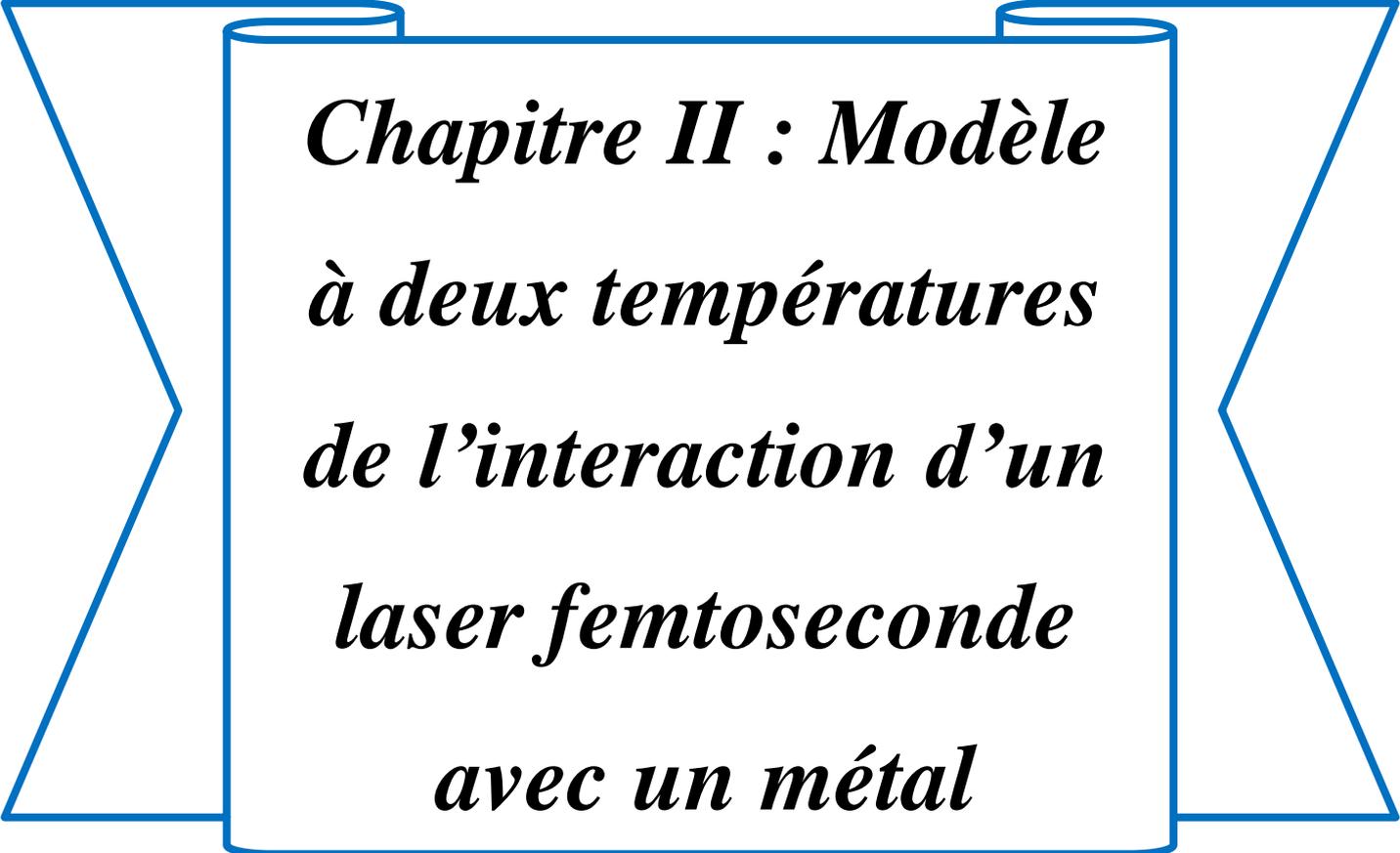
Ce phénomène est repris avec plus de détails et d'explications dans le chapitre II.

## II.5 Conclusion

L'interaction laser-matière est de plus en plus intégrée dans le domaine industriel, en particulier avec l'emploi des lasers à impulsions ultra-courtes. Cela permet d'offrir des résultats spectaculaires d'où l'importance de la compréhension des effets qui se manifestent dans ces phénomènes, notamment les effets thermiques de l'irradiation avec un laser femtoseconde ; que nous essayons d'interpréter dans le chapitre suivant.

---

<sup>19</sup>C'est une grandeur statistique et elle représente la longueur d'onde de de **Broglie** moyenne des particules d'un gaz porté à une certaine température.



*Chapitre II : Modèle  
à deux températures  
de l'interaction d'un  
laser femtoseconde  
avec un métal*

## **1 Introduction**

Dans le domaine de l'irradiation de matériaux avec des impulsions subpicosecondes, un traitement spécifique est nécessaire du fait de la non validité des lois de transfert de chaleur à une seule température. Ce type d'interaction laser-matière est décrit par une approche purement thermique à l'échelle macroscopique par un modèle connu sous le nom de 'Modèle à deux températures' (2T).

Bien avant l'avènement des lasers et leur utilisation dans des applications, la première version d'un modèle à deux températures a été proposée par Kaganov en 1957 [18]. Plus tard, un intérêt pour ce modèle réapparut dans les années 1970 [19]. Ainsi, suite à des recherches sur l'évaporation due à une absorption d'impulsions courtes par un solide, Anisimov proposa en 1974, un modèle phénoménologique parabolique à deux températures, pour décrire la transition entre un gaz d'électrons hors-équilibre et le réseau [20]. Par la suite, un modèle hyperbolique à deux températures basé sur l'équation de transport de Boltzmann a été rigoureusement mis au point par Qiu et Tien en 1993 [21]. Un tel modèle peut être parfaitement simplifié en un modèle parabolique tel que proposé par Anisimov.

Le modèle à 2T permet de décrire le chauffage du gaz d'électrons [18], et l'échange d'énergie entre les électrons et le réseau, dans la mesure où les deux sous-systèmes sont supposés être en équilibre thermodynamique à différentes températures [22]. Donc, cela consiste à attribuer une température aux électrons libres et au réseau ionique pour définir la distribution spatiale et temporelle du champ de températures au sein du métal dans ce régime impulsif ultra-court.

Dans ce chapitre, Nous essayerons de comprendre en premier lieu le fondement du modèle à 2T, puis nous allons nous intéresser à certains aspects fondamentaux de l'interaction laser femtoseconde-métal, cela en vue d'essayer d'identifier les avantages potentiels spécifiques à l'utilisation de ce régime d'impulsion. Enfin, Nous présentons le système d'équations décrivant l'évolution spatiale et temporelle des deux températures dans le matériau.

### **II.2 Fondement du modèle à 2T**

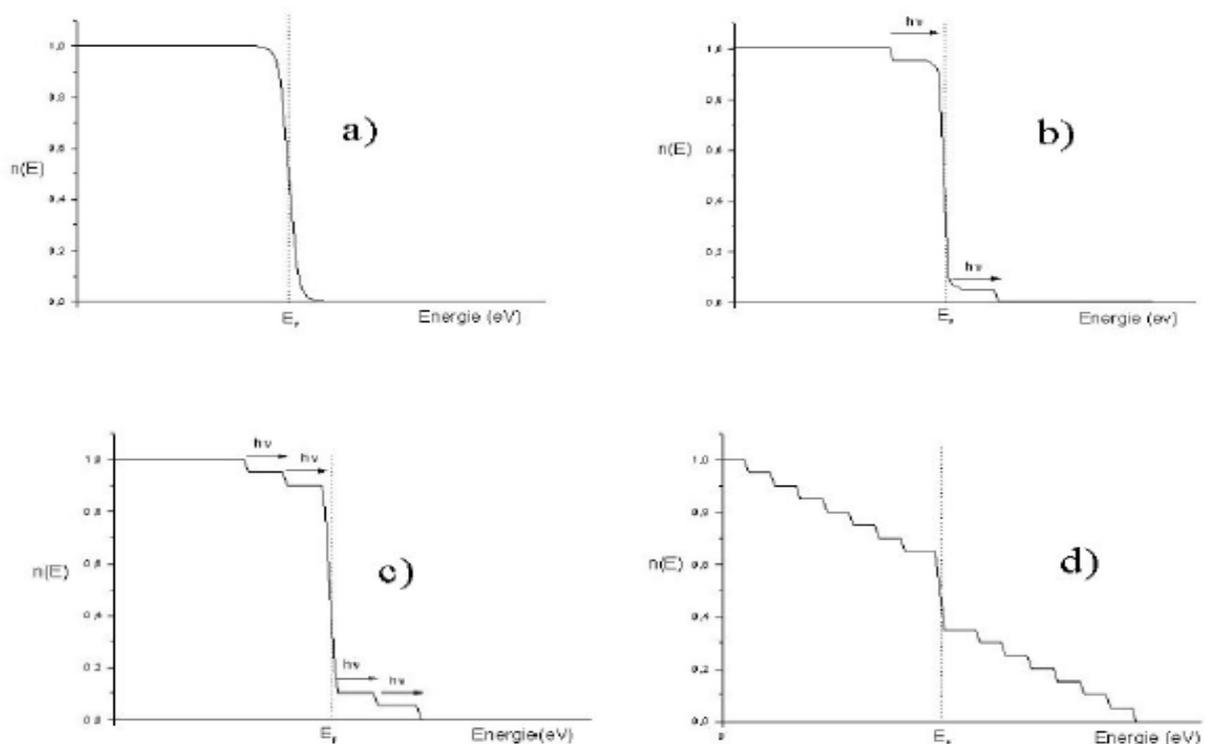
Afin de mieux assimiler les causes qui ont mené à la nécessité de proposer le modèle à 2T pour traiter de l'ablation avec un laser ultra-court, nous allons nous intéresser à deux

effets importants, à savoir : le mécanisme d'absorption des photons par les électrons et à la relaxation, dans ce régime d'impulsions.

## II.2.1 Phénomènes d'absorption

Lorsqu'une impulsion laser femtoseconde est incidente sur la surface d'un métal, les électrons sont les premiers à réagir[23], et de ce fait, nous décrirons d'abord la façon selon laquelle l'énergie électromagnétique peut être absorbée par les électrons.

Dans un métal, la densité électronique  $n(E)$  est exprimée en fonction de l'énergie  $E$  par la distribution de Fermi-Dirac [24]. Selon le principe d'exclusion de Pauli, lorsqu'un photon d'énergie  $h\nu$  interagit avec un métal, seuls les électrons ayant une énergie comprise entre  $E_F^1$  et  $E_F - h\nu$  vont absorber l'énergie des photons, puis se sera ceux entre  $E_F - h\nu$  et  $E_F - 2h\nu$ . Par conséquent, l'absorption de plusieurs photons incite à la libération de plus en plus d'états énergétiques, conduisant ainsi à une distribution de densité électronique comme indiquée dans la figure (II.1) [25] :



**Figure II.1** : Densité d'état électronique en fonction de l'énergie. a) équilibre thermique : distribution de fermi-Dirac. b) absorption initiale : le system est hors équilibre. c) libération des états  $E_F - h\nu$ , et possibilité d'absorption par les électrons d'énergie  $E_F - 2h\nu$ . d) la distribution électronique prend une forme en escalier.

<sup>1</sup>L'énergie de Fermi, il s'agit du dernier niveau occupé à la température **0** Kelvin.

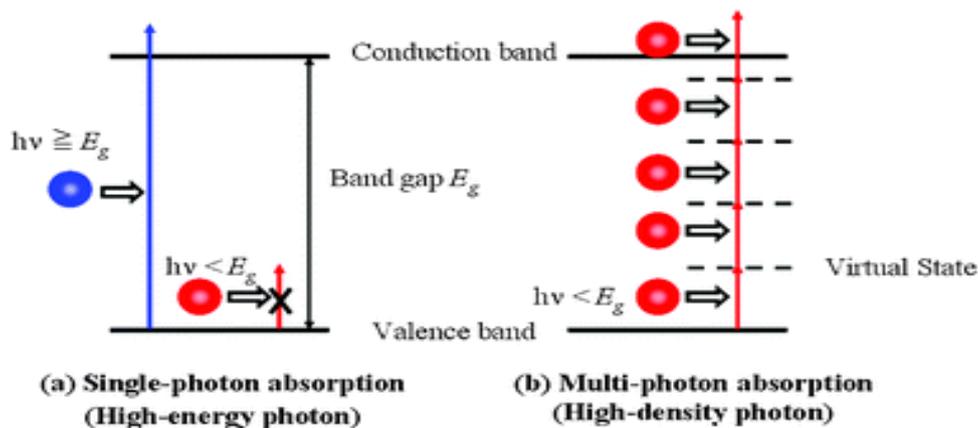
En présence des électrons libres, ce mécanisme d'absorption se produit par le processus Bremsstrahlung inverse (BI) <sup>2</sup> [10,17,26], où l'électron libre peut échanger de l'énergie avec un champ électromagnétique externe. Ainsi, l'électron passe à des niveaux d'énergies supérieures en acquérant une accélération. Il a été montré que l'absorption par BI est plus opérante au voisinage de la densité critique<sup>3</sup>, qui est en moyenne égale à  $3 \times 10^{-27} m^{-3}$  pour les métaux [6]<sup>4</sup>. Elle est dix fois plus petite que la densité électronique, et c'est pour cette raison que la profondeur optique dans les métaux est très faible (quelque dizaine de nanomètres) [24]. Par ailleurs, si l'énergie des photons est insuffisante, l'électron absorbe plusieurs photons à la fois par les phénomènes d'absorption multiphotonique et à deux photons :

- **Absorption multiphotonique**

Elle se définit par la transition atomique au cours de laquelle un atome absorbe simultanément plusieurs photons via un état virtuel [27] (figure II.2). C'est un processus non-linéaire [28], qui se produit lorsque l'énergie d'un état atomique perturbé coïncide avec l'énergie d'un nombre entier de photons, de façon à satisfaire la relation [29] :

$$E_a - E_b = k \cdot hv \quad (II.1)$$

$E_a$  et  $E_b$  sont les énergies des niveaux atomiques considérés,  $hv$  l'énergie d'un photon, et  $k$  un nombre entier.



**Figure II.2 :** Schéma représentatif des excitations électroniques dans les matériaux. **a)** absorption d'un photon. **b)** absorption multiphotonique [28].

<sup>2</sup>Appelé aussi absorption collisionnelle

<sup>3</sup>Densité au-delà de laquelle une onde électromagnétique de pulsation  $\omega_0$  ne se propage plus.

<sup>4</sup>Page 29-30.

La densité extrêmement élevée des photons nécessaires pour induire une absorption multiphotonique peut être facilement générée par un laser femtoseconde grâce à sa puissance et sa finesse spectrale.

- **Absorption à deux photons**

Dans ce cas, l'électron absorbe deux photons quasiment en même temps, pour réaliser un état existant qui correspond à la somme de l'énergie des photons incidents. Afin d'atteindre un état final, aucun état intermédiaire n'est nécessaire, on considère plutôt un état virtuel qui ne correspond pas à un état propre de l'énergie électronique ou vibratoire [30].

## II.2.2 Phénomènes de relaxation

L'électron ayant acquis une énergie portée par l'onde électromagnétique de l'impulsion laser ultra-courte, se retrouve perturbé et passe à une situation hors-équilibre thermodynamique, ce qui va l'amener à redistribuer son énergie par un processus de relaxation.

La relaxation peut se distinguer en trois processus :

- les processus radiatifs,
- les processus de collisions (appelé aussi les processus thermiques),
- les processus de piégeages (qui ne seront pas évoqués dans ce manuscrit).

- **Relaxations radiatives**

Ces relaxations impliquent des recombinaisons électrons-trous ; elles sont essentiellement rencontrés dans les semi-conducteurs, et se produisent moins dans le cas des métaux et des diélectriques. Dans l'étude des interactions en régimes d'impulsions femtosecondes, ces processus ne sont pas pris en compte [6].

- **Relaxation par collisions électrons - électrons**

Un électron excité est en interaction avec tous les autres électrons du système pendant lequel il leur transmet une partie ou la totalité de son énergie. Dans le cas des métaux, ce problème est traité par la théorie dite du «*liquide de Fermi*»<sup>5</sup>[6], ces électrons perturbés optiquement présentent une distribution électronique hors équilibre impliquant la thermalisation au sein des électrons [25]<sup>6</sup>. Autrement dit, le temps de mise en équilibre de la

---

<sup>5</sup> Elle s'agit de la théorie du gaz de Fermi à laquelle on ajoute les interactions, utilisée pour décrire les collisions électron-électron. [6] (page 36).

<sup>6</sup>Page 21.

température des électrons, est de l'ordre de la grandeur inverse de la fréquence du plasma<sup>7</sup>électronique, à savoir [10] :

$$\frac{1}{\omega_{pe}} \approx 10^{-2} \text{fs} \quad (\text{II.2})$$

Des études ont montré que le temps de relaxation des électrons peut être réduit jusqu'à  $10^{-16}$  s à des températures de gaz d'électrons de  $10^5$  K [27]. La fin de cette étape résulte en une distribution de Fermi-Dirac, et par conséquent une température peut être alors associée aux électrons. La diffusion thermique au sein du gaz d'électrons peut être alors entamée [25]. Ce type de collision est favorisé, du fait que la densité électronique est relativement élevée.

Ce n'est qu'une fois que la thermalisation des électrons est effectuée, que le processus thermique de collision électrons-phonon apparaît.

- **Relaxation par collision électrons – phonons**

Les électrons sont aussi en interaction avec les ions, et dans ce cas il y a transfert d'énergie au réseau d'ions. Dans le cadre de l'approximation de Born-Oppenheimer<sup>8</sup>, on considère que le déplacement des ions autour de leur position d'équilibre est très faible, ce qui permet d'introduire la notion d'interaction électron-phonon [25].

Dans le temps qui précède la thermalisation des électrons, les sous-systèmes gaz d'électrons et réseau métallique interagissent faiblement [27], et ainsi, le transfert d'énergie des électrons aux ions est nettement plus long que la durée du pulse laser (*figure II.3*). Effectivement, dans certaines analyses numériques on a constaté que le temps typique pour que les électrons et les phonons atteignent l'équilibre thermique, était de quelques picosecondes [22]. Par conséquent, la diffusion de chaleur classique dans le réseau métallique ne peut pas se produire durant le pulse laser.

---

<sup>7</sup>C'est la fréquence caractéristique des ondes de plasma, c'est-à-dire des oscillations de charge électrique

présente dans les milieux conducteur, comme le métal ou les plasmas, tel que :  $\omega_p = \sqrt{\frac{n e^2}{m \epsilon_0}}$

<sup>8</sup>C'est une approximation qui suppose que les ions du réseau bougent beaucoup plus long temps que les électrons qui les entourent, les ions sont alors considérés comme de masse fixe.

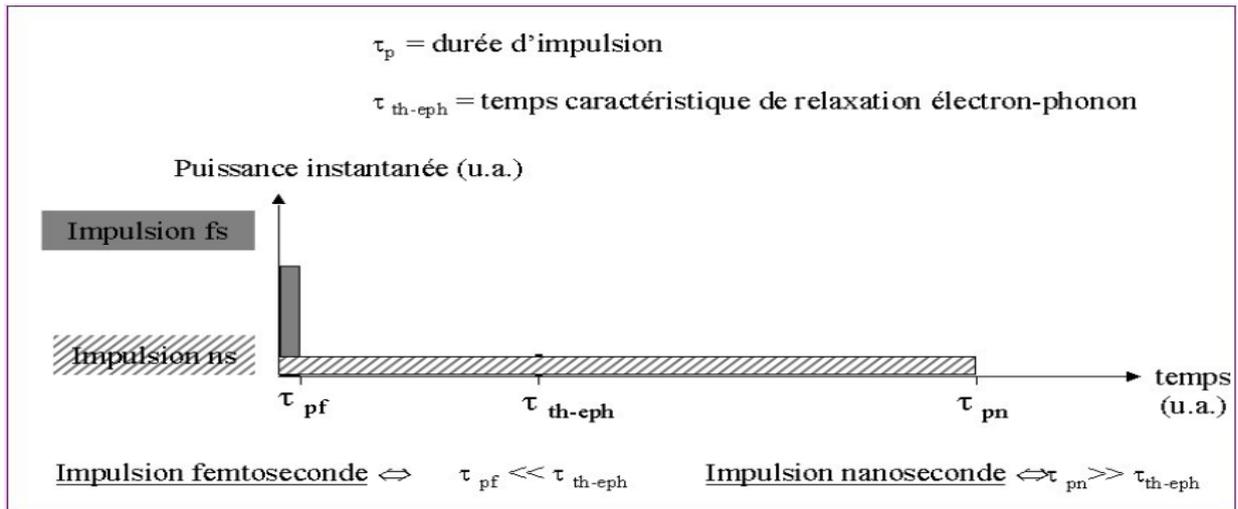


Figure II.3 : Représentation schématique comparative de la durée d'impulsion femtoseconde avec le temps caractéristique du transfert de chaleur aux phonons [25]<sup>9</sup>.

## II.3 Processus d'irradiation

### II.3.1 L'ablation laser femtoseconde

Le transfert de chaleur et d'énergie dans un métal excité optiquement par une impulsion laser ultra-courte, se font en trois phases distinctes (esquissée dans la figure II.4 [31]) à savoir [32] :

- Absorption de l'énergie laser par les électrons.
- Transport de l'énergie par les électrons et relaxation de celui-ci.
- Diffusion thermique et équilibre thermodynamique de la cible.

En première étape, les électrons libres absorbent l'énergie du laser par couplage électrons-photons au cours de la durée d'impulsion (figure II.4(a)), ceci provoque un déséquilibre thermique dans le gaz d'électrons [33] et une augmentation rapide de la température de ce dernier [24]. La concentration des électrons absorbant le rayonnement incident peut être évaluée par [27] :

$$n = \frac{h\nu N}{E_F} \quad (\text{II.3})$$

Avec  $\nu$  la fréquence de la lumière incidente.

En deuxième étape, il ya d'abord thermalisation des électrons  $th_{e-e}$ , et une fois que ces derniers ont atteint l'équilibre thermique, la densité d'état peut être représentée par une

<sup>9</sup>Page 34.

distribution de Fermi-Dirac, et à cette instant-là, une température  $T_e$  peut être attribuée aux électrons. A ce stade, la température du réseau demeure celle de l'ambiante [32,34].

De plus, un autre phénomène concurrent se produit, à savoir que les électrons chauds diffusent en profondeur balistique, et transportent la chaleur par le mouvement balistique ; à une vitesse proche de celle de Fermi ( $10^6$  m/s) [20,31].

Par la suite, une seconde phase commence, elle a lieu à  $t = t_{e-e}$ , où les électrons localisés initialement dans la gamme balistique, seront poussés par le gradient de température, et diffuseront dans la partie profonde de la cible (figure II.4(b)) [31]. Ils transmettront ainsi pendant une durée de l'ordre de quelques picosecondes, leur énergie dans le réseau à travers le couplage électron-phonon [35], à une vitesse beaucoup plus lente que le mouvement balistique ( $10^4$  m/s) [34].

La phase finale débute à  $t = t_{e-ph}$ , c'est-à-dire lorsque les électrons et le réseau ionique atteignent l'équilibre thermodynamique, et c'est ainsi que la diffusion thermique classique s'installe, et entraîne la dissipation de la chaleur dans la masse [32] (figure II.4(c)).

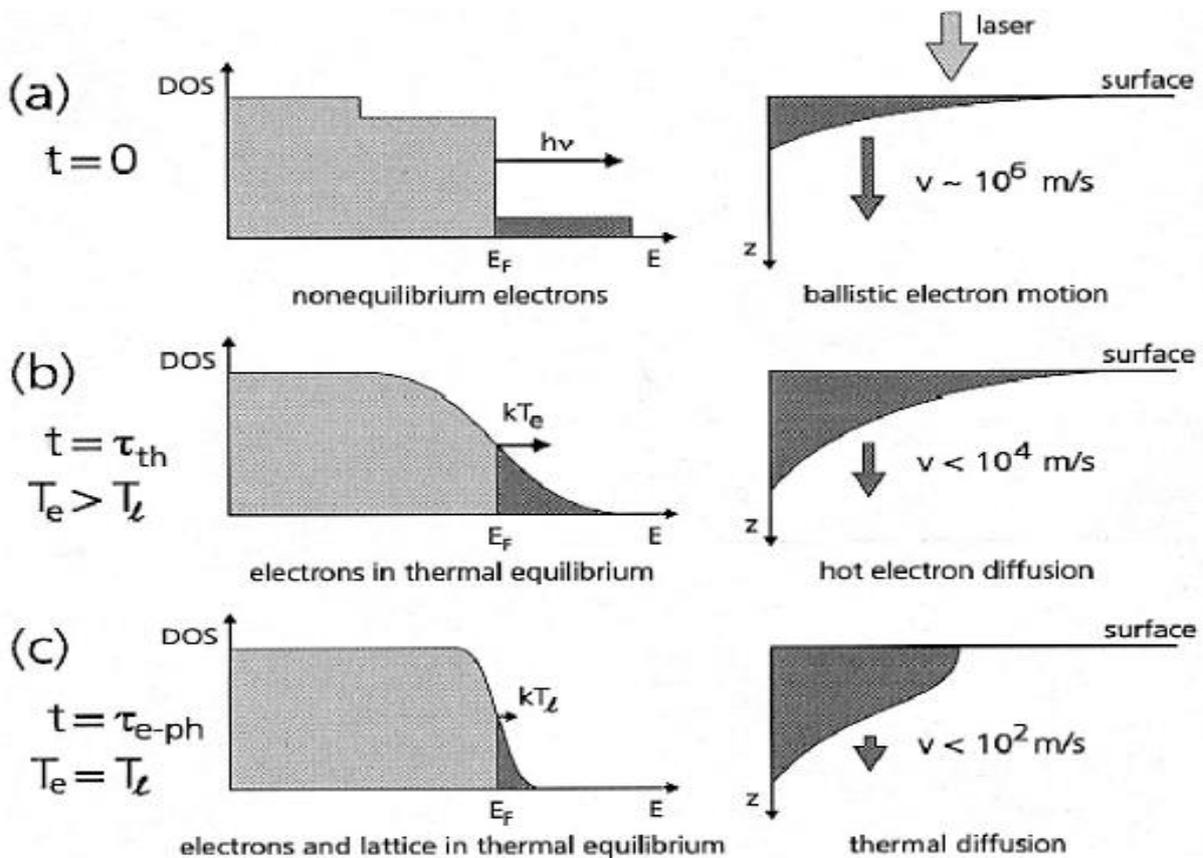


Figure II.4 : Trois phases distinctes du transfert thermique dans un métal excité optiquement.

### II.3.2 Effet non-thermique

Observé par des études pompe-sonde, où la fusion non-thermique du réseau désigne la perte de particules avant 1 ps, c'est-à-dire, avant que le matériau n'atteigne une température commune [23]. En effet, le surchauffe due à l'irradiation par des impulsions laser ultra-courtes est caractérisée par la nucléation homogène<sup>10</sup>, où le solide se retrouve dans un état intensément hors-équilibre du fait de l'énergie optique déposée dans le sous-système électronique. Le réseau étant 'froid', la dynamique de fusion est déterminée par l'équilibre électron-phonon, où la fusion complète est atteinte en quelques picosecondes. En revanche, étant donné que les impulsions ultra-courtes permettent de fournir une énergie qui conduit à un taux de chauffage très élevés, des températures de dizaines ou de centaines de Kelvin par picoseconde sont facilement accessibles, ce qui dépasse alors la température de fusion et aussi la limite de stabilité statique. Ainsi, cette transition de phase rapide est expliquée par une instabilité du réseau due à l'excitation d'une haute densité de plasma (électrons-ions). Cependant, dans ce cas, le réseau devient instable avant le chauffage des phonons [36].

En fin de compte, à partir du moment où la transition est ultra-courte, le mécanisme physique non-thermique est opérationnel. Effectivement, un tel temps de fusion court ne peut pas être expliqué par la fusion thermique classique [24], car l'ionisation de la cible est effectuée dans un temps beaucoup plus court que le temps typique de l'ablation thermique. En outre, il a été démontré que la taille de ces particules était due à un mécanisme de fragmentation mécanique et non pas à partir de la phase vapeur [37].

### II.3.3 Formation de plasma et modification de surface

La dernière étape qui caractérise l'interaction laser-matière est l'éjection de plasma d'électrons et d'ions, et d'agrégat, accompagné d'une éventuelle modification de la surface ablatée.

- **Formation du plasma**

Après avoir gagné plus d'énergie laser, les électrons deviennent assez énergétiques pour être éjectés hors de la surface de la cible [26]. L'émission d'électrons est due à deux phénomènes : l'émission photoélectrique et l'émission thermoïonique [20] ; et il se trouve qu'à des intensités élevées de courtes durées, l'émission photoélectrique s'avère le mécanisme dominant d'émission d'électrons [26]. Cette émission implique l'accélération des ions dans le

---

<sup>10</sup> C'est le mécanisme de fusion thermique rapide des solide irradié par des impulsions laser ultra-court.

champ électrostatique causé par la séparation de charge<sup>11</sup> créée par les électrons énergétiques échappés de la cible. Ainsi, le champ électromagnétique due à la séparation de charge agit sur les ions de la cible, et en même temps, la force pondéromotrice due au champ laser dans l'épaisseur de peau, pousse les électrons plus profondément dans la cible, ce qui crée un mécanisme d'accélération d'ions dans la cible. Par conséquent, un régime de déséquilibre extrême et d'ablation de matière a lieu. Lorsque l'ionisation est terminée, le plasma formé dans la couche de peau de la cible, possède une densité d'électrons libres comparable à la densité d'ions, qui est de l'ordre de  $10^{23} \text{ cm}^{-3}$  [10].

Dans l'ablation ultra-courte, l'absorption du laser par le panache peut être négligé, car cette étape est générée habituellement après la fin du pulse laser [26].

Le modèle à 2T ne tient pas compte de la formation du plasma et du panache qui provient de l'éjection de la matière de la cible, donc, la génération du plasma résultant est simulée par un modèle hydrodynamique, qui décrit l'enlèvement de matière et le comportement de dilatation du panache [26].

- **Modification de surface**

Lors de l'irradiation avec un laser femtoseconde, l'éjection d'une partie de la matière laisse un cratère de structures différentes (*figure II.6*) [6,23], qui se forme à la surface de la cible telle que les stries observées sur la *figure (II.5)* [6].

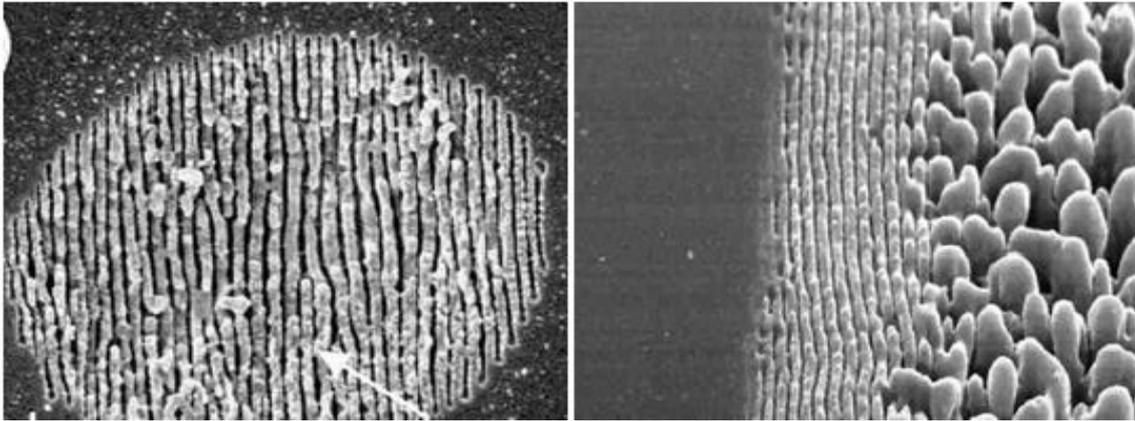
La formation de ces nanostructures de surface périodiques<sup>12</sup> prouve sans aucun doute qu'un changement induit dans les propriétés optiques de la surface s'est produit, où la taille et la forme des stries dépend essentiellement de la forme (longueur d'onde et nombre d'impulsion) du faisceau laser et de sa fluence, ainsi que la constante diélectrique du milieu [6,23].

Compte tenu des résultats publiés dans la littérature, qui s'appuient sur l'idée que tous les matériaux se comportent à peu près de la même manière, lorsqu'ils sont irradiés par des impulsions ultra-courtes à des intensités supérieures au seuil d'ablation. Sous cette condition, l'ablation laser conduit inévitablement à la génération de nanoparticules de la matière cible, et cette caractéristique est d'un intérêt de premier plan en nanophysique, et également en vue d'applications technologiques possibles pour les nanodispositifs [22].

---

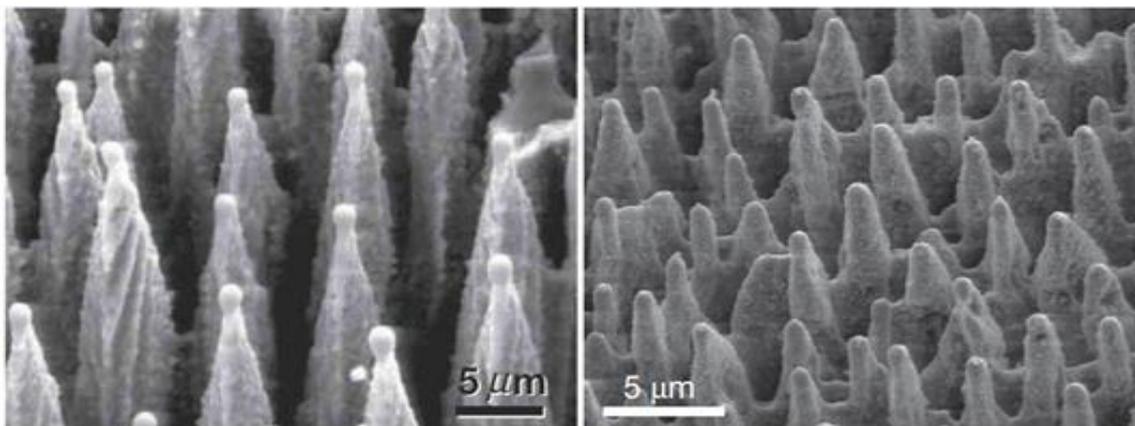
<sup>11</sup>La séparation de charge se produit si l'énergie absorbée par les électrons est supérieure à l'énergie de Fermi, qui est approximativement la somme de l'énergie de liaison et la fonction du travail.

<sup>12</sup>Dont la période est proche de la longueur d'onde du laser.



**Figure II.5 :** A gauche : Structure formée sur un monocristal de ZnO avec une fluence de  $0.48\text{J}/\text{cm}^2$  ;  $\lambda = 800\text{nm}$  ;  $\tau = 100\text{fs}$  avec 50 pulses. A droite: Structure en perles au centre du cratère et stries au bord, initialement seules les stries sont présentes.

Un examen plus approfondi de la surface irradiée en utilisant un microscope électronique à balayage révèle que des surfaces de silicium [6]<sup>13</sup> et de silicone [23]<sup>14</sup> ont été transformées en une forêt de pics de taille micrométrique. Cette morphologie de surface évolue après irradiation du silicium et de silicone avec plusieurs centaines d'impulsions laser.



**Figure II.6 :** A gauche : structure conique formée à la surface du silicium irradié par une centaine de pulses de 100fs à une fluence de  $1\text{J}/\text{cm}^2$ . A droite : structure formée à la surface de silicone, irradié par 500 pulses de 100fs à une fluence de  $8\text{J}/\text{m}^2$ .

L'apparition de cratères sur la surface de la cible a été utilisée comme indicateur, pour déterminer la densité d'énergie de chauffage de l'impulsion correspondant au seuil d'ablation de la couche de surface [37].

<sup>13</sup>Page 21 ; 22 ; 24.

<sup>14</sup>Page 13.

## II.4 Système à résoudre

Après irradiation par un laser à impulsions ultra-courtes, l'équilibre thermique entre les électrons est atteint en quelques femtosecondes, tandis que le chauffage du réseau ne se manifeste qu'à la fin de cette impulsion, qui conduit à un refroidissement des électrons produit par couplage électrons-phonons. Ceci nous met face à une situation physique d'un bain d'électrons chauds dans un réseau d'ions froids, et les deux sous-systèmes supposés être en équilibre thermodynamique, peuvent être en effet caractérisés par leurs températures respectives à savoir  $T_e$  et  $T_i$ .

En tant que tels, le transfert de chaleur dans le métal peut être décrit par un système de deux équations différentielles couplées, chacune d'elle obéissant à la loi classique de diffusion de chaleur de Fourier. L'écriture des équations à deux températures est alors donnée par [20, 22, 25,32] :

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot (K_e \vec{\nabla} T_e) - G(T_e - T_i) + S$$

(II.4)

$$C_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot (K_i \vec{\nabla} T_i) + G(T_e - T_i)$$

Les termes  $C_e$  et  $C_i$  représentent respectivement les capacités calorifiques électronique et du réseau d'ions par unité de volume,  $K_e$  et  $K_i$  sont les conductivités thermiques des deux sous-systèmes, le terme  $G$  est la constante de couplage électron-phonon, et enfin,  $S$  est le terme source de chauffage, qui est de fait le laser.

La première équation représente la diffusion de la chaleur entre les électrons, et la seconde équation décrit le transfert de chaleurs au réseau.

Etant donné que, le diamètre du faisceau laser est très supérieur à la profondeur de pénétration de chaleur, ces équations peuvent être simplifiées au transport de chaleur à une dimension, les équations (II.4) deviennent [32] :

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \cdot \left( K_e \frac{\partial T_e}{\partial x} \right) - G(T_e - T_i) + S$$

(II.5)

$$C_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \cdot \left( K_i \frac{\partial T_e}{\partial x} \right) + G(T_e - T_i)$$

### II.4.1 Capacité calorifique

La capacité calorifique  $C_i$  ( $J m^{-3} K^{-1}$ ) du réseau d'ions n'est en fait, que la capacité classique du métal. En tant que tel, elle est pratiquement constante pour des températures supérieures à la température de Debye<sup>15</sup>. La capacité calorifique des électrons est proportionnelle à la température des électrons, avec un coefficient de chaleur spécifique électronique réduite  $A_e$ , qui dépend du métal considéré. Elle est donnée par la relation [31, 32,33] :

$$C_e = A_e T_e \quad (II.6)$$

Cette expression est utilisée pour des températures électroniques largement inférieures à la température de Fermi  $T_F$  :

$$T_F = \frac{E_F}{k_B} \quad (II.7)$$

La capacité thermique électronique est très inférieure à la capacité thermique du réseau, donc, les électrons peuvent être chauffés à des températures transitoires très élevées [17].

### II.4.2 Conductivité thermique

Comme la capacité calorifique du réseau, la conductivité thermique du réseau d'ions  $K_i$  n'est en réalité que la conductivité thermique classique du matériau. Elle représente une faible portion de la conductivité totale, en effet, elle est prise à 1% telle que [32] :

$$K_i = 0.01 K_S \quad (II.8)$$

Car

$$K_i \ll K_e \quad (II.9)$$

La conductivité thermique électronique ne peut pas être mesurée explicitement, elle est décrite par une approximation qui est suffisante à travers l'expression définie par [25,34] :

$$K_e = K_{oe} \frac{T_e}{T_i} \quad (II.10)$$

Où  $K_{oe}$  représente la conductivité thermique du matériau lorsque celui-ci est en équilibre thermodynamique.

Pour plus de rigueur, lorsque les températures électroniques atteignent des valeurs comparables à celle de Fermi, l'expression la plus adapté est [32] :

$$K_e = \chi \frac{(\vartheta_e^2 + 0.16)^{1.25} (\vartheta_e^2 + 0.44) \vartheta_e}{\sqrt{\vartheta_e^2 + 0.092} (\vartheta_e^2 + \eta \vartheta_i)} \quad (II.11)$$

---

<sup>15</sup>C'est une température caractéristique du comportement de la capacité thermique des solides.

Avec  $\vartheta_e = k_b T_e / \varepsilon_F$  et  $\vartheta_i = k_b T_i / \varepsilon_F$

### II.4.3 La constante de couplage

Les équations (II.5) sont reliées par un terme qui est proportionnel à la différence de température entre les électrons et le réseau, et à un facteur de couplage électron-phonons noté  $G$  [18]. Ce terme désigne l'énergie transféré par les électrons au réseau par unité de volume du métal et par unité de temps, tel que [25,20] :

$$\Delta E = \left[ \frac{dU}{dt} \right]_{e-ph} = G(T_e - T_i) \text{ avec } G = \frac{\pi^2 m n s^2}{6 \tau_e T_e} \quad (\text{II.12})$$

Où  $s$  est la vitesse du son et  $\tau_e$  le temps de relaxation des électrons

En principe, cette constante est dépendante de la température, cette dépendance disparaît pour des températures supérieures à la température de Debye [31].

### II.4.4 Le terme source

Le terme de source est l'élément producteur de la chaleur par le faisceau laser. La répartition temporelle de ce faisceau est généralement comme une gaussienne, elle représente la densité de puissance apportée par une impulsion, et est donnée par [32] :

$$S = 0.94 \frac{1-R}{t_p(\delta+\delta_b)(1-e^{-d/(\delta+\delta_b)})} J \cdot \exp \left[ -\frac{x}{(\delta+\delta_b)} - 2.77 \left( \frac{t}{t_p} \right)^2 \right] \quad (\text{II.13})$$

$R$  étant la réflectivité ;  $t_p$  la largeur de l'impulsion laser à mi-hauteur (FWHM) ;  $\delta$  et  $\delta_b$  les gammes optique et balistique respective ;  $d$  l'épaisseur de l'échantillon et  $J$  la fluence<sup>16</sup>.

- **Profondeur de pénétration optique**

Lorsqu'une impulsion laser est incidente sur une surface métallique, l'énergie du laser est absorbée par les électrons libre dans ce qui est appelé '*l'épaisseur de Peau*', appelée aussi la profondeur optique [33]. C'est la profondeur atteinte par le rayonnement électromagnétique [34].

---

<sup>16</sup>Densité d'énergie absorbée par unité de surface.

- **Profondeur de pénétration balistique**

Comme vu précédemment, les électrons chauffés seront refroidis par deux procédés différents : la diffusion thermique par collisions électrons-électrons, et le mouvement balistique. On rend compte dans ce paragraphe de l'effet du mouvement balistique des électrons excités qui font pénétrer l'énergie laser dans les profondeurs du matériau.

L'effet de la conduction thermique est modifié en ajoutant la gamme balistique à la profondeur optique, en effet, l'inclusion de l'effet balistique dans la distribution de la profondeur de l'intensité laser améliore considérablement la prédiction du modèle ; pour le seuil de fluence de fusion et la longueur critique de diffusion des électrons [34].

Pour les métaux de transition, le transport balistique n'est pas considéré, mais s'il existe, il est dans la même gamme que la profondeur optique [31].

## **II.5. Conclusion**

Le procédé d'ablation des matériaux par lasers de durée d'impulsion femtoseconde présente un aspect différent en ce qui concerne le transfert de chaleur dans le métal. L'éjection de matière, la formation du plasma, ainsi que la structure de surface qui en résulte, par rapport à celle observée pour les régimes d'impulsion plus long sont fondamentalement distincts.

L'établissement de températures d'équilibre entre les électrons et la matrice a été considéré dans un grand nombre de publications, où il a été montré que pendant le processus de relaxation, le métal doit être traité comme un solide cristallin constitué de deux systèmes indépendants à savoir le réseau ionique et le gaz d'électrons libres [20].

En effet, du fait que le temps de relaxation des électrons est plus rapide que le temps de relaxation du réseau ; ce dernier n'apparaît qu'après la fin du pulse laser. Ainsi, durant l'impulsion il n'y a que les électrons qui se manifestent par une croissance instantanée de leur température, d'où le déséquilibre thermique entre les électrons et le réseau caractérisé chaque un par sa température. Ceci conduit à un traitement spécifique par l'utilisation d'un modèle à deux températures. Le modèle à 2T est un système d'équations différentielles couplées par le transfert de chaleur entre les électrons et le réseau. La résolution de ce système d'équations nécessite un traitement numérique pour définir la distribution spatiale et temporelle du champ de température, la résolution du système ; ainsi que les résultats obtenus sont l'objet du suivant chapitre.



***Chapitre III :***  
***Traitement***  
***numérique***

### III.1 Introduction

Nous allons nous inspirer du modèle à deux températures tel que présenté par Chowdary *et al.* [32], qui l'ont utilisé pour l'interaction d'un pulse laser de 100 fs avec de l'or.

Dans notre cas, nous appliquons le modèle à deux températures dans l'étude de l'interaction d'un pulse laser de 290 fs avec du Molybdène. Nous reprenons dans notre travail les paramètres expérimentaux utilisés par Kotsedi *et al.* [38,39].

### III.2 Présentation du code de calcul

Les outils de simulation numérique occupent une place prépondérante dans l'étude de l'évolution des grandeurs et la modélisation du comportement des différents systèmes physiques, dans notre cas, par cause d'inhomogénéité de la distribution de la température dans la cible après irradiation par laser, et du fait qu'il y a contribution de deux températures, nous avons choisi pour réaliser ce travail deux logiciels à savoir : **Gambit** et **Fluent**, le premier est un générateur de maillage et le second est un solveur numérique en volume fini.

#### III.2.1 Préprocesseur Gambit

L'outil Gambit est un mailleur qui permet de créer sa propre géométrie en **2D** et **3D** avec une grande précision, il peut également assurer plusieurs types de maillage : structuré, non structuré, hybride..., en coordonnées cartésiennes, polaires, cylindriques et axisymétriques [40].

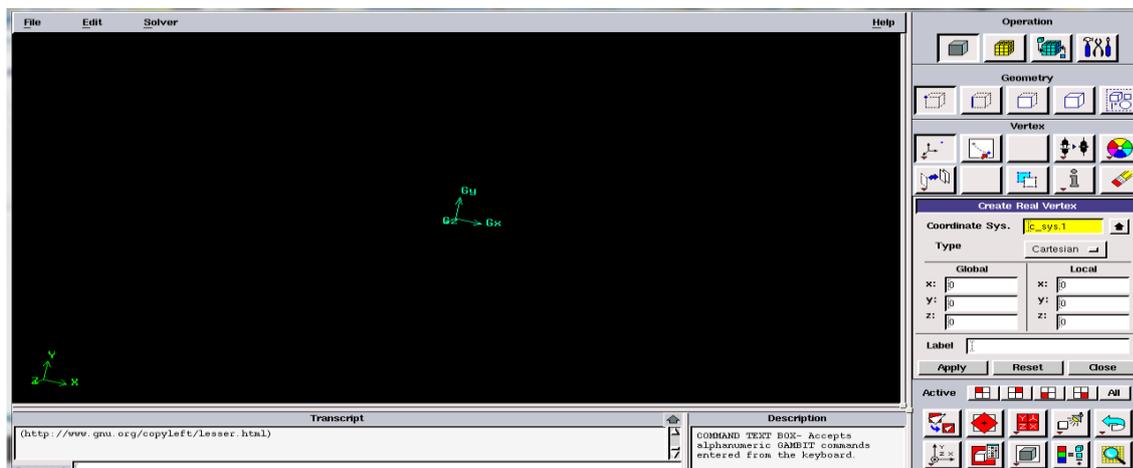
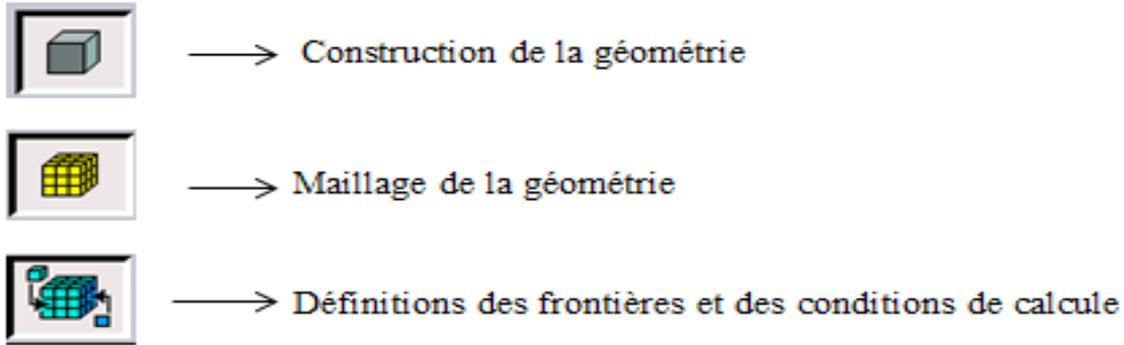


Figure III.1 : Interface d'utilisation du logiciel Gambit.



**Figure III.2 :** Etapes principales du logiciel de maillage (GAMBIT).

Gambit permet de réaliser les trois fonctions suivantes : la construction de la géométrie du problème, le maillage et sa vérification, et la définition des frontières et des domaines de calcul (conditions initiales et aux limites). Pour générer des fichiers *\*.msh* utilisés par le code Fluent pour résoudre les équations par la méthode des volumes finis [40].

### III.2.2 Processeur Fluent

Le logiciel Fluent est un solveur numérique qui constitue un outil robuste de simulation, utilisé pour la modélisation des écoulements des fluides, les transferts thermiques, ainsi qu'une multitude de phénomènes associés [41].

Le solveur Fluent est basé sur la résolution par la méthode des volumes finis de l'équation générale de conservation<sup>1</sup> suivant [43]<sup>2</sup> :

$$\frac{\partial(\rho\phi)}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho\vec{u}\phi) = \vec{\nabla} \cdot (\Gamma_{\phi}\vec{\nabla}(\phi)) + S_{\phi} \quad (\text{III.1})$$

Le paramétrage des modèles sur Fluent s'effectue à travers une interface graphique ; constitue d'une console, un panneau de contrôle, une boîte de dialogue, et des fenêtres graphiques. La console Fluent est la fenêtre principale qui contrôle l'exécution du programme (figure III.3). Elle contient une barre de menu (file, grid, define, solve...) dont les éléments sont disposés pour correspondre à la séquence typique des actions que vous effectuez dans Fluent (i.e., de gauche à droite et de haut en bas) [41].

<sup>1</sup>Elle constitue les équations de conservation de quantité de mouvement, de continuité et de du bilan d'énergie, de Navier-Stokes.

<sup>2</sup>Page 86.

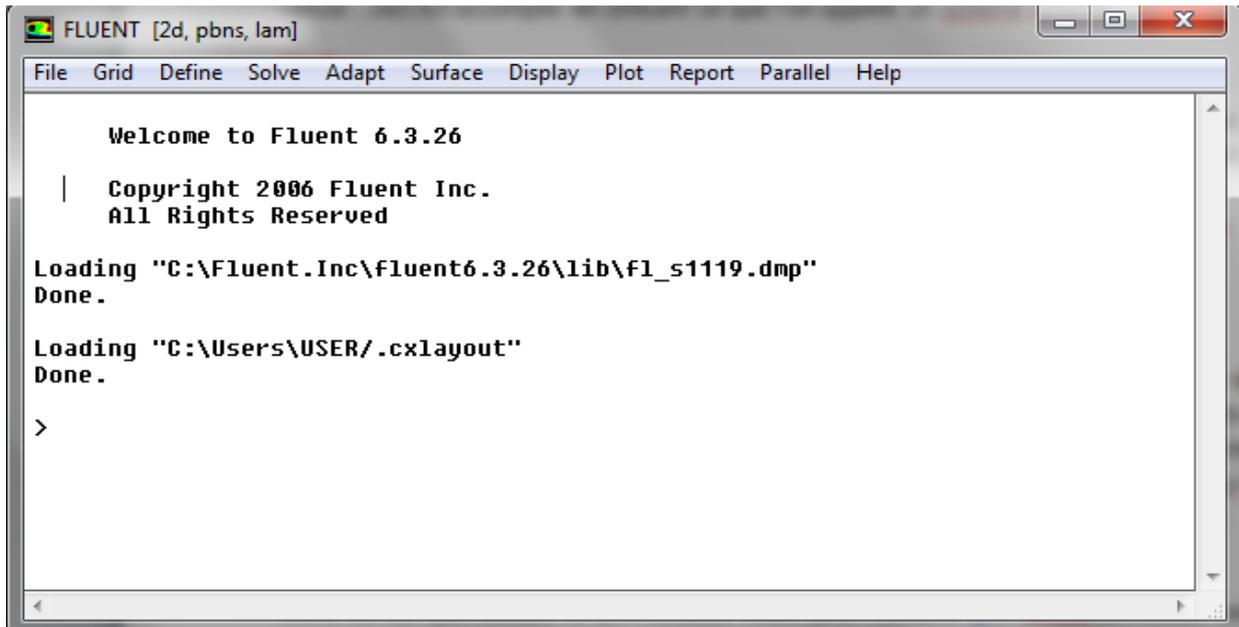


Figure III.3 : La fenêtre principale du code FLUENT (la console).

Cependant, le solveur n'est pas destiné à l'étude du chauffage par irradiation ultra-courts, Fluent ne peut être directement utilisé pour le modèle à deux températures. Afin d'adapter le solveur à la résolution de ces équations différentielles couplées, un code doit être développé par l'utilisateur, et interprété par le solveur, appelé **UDF** (*User-Defined Function*).

- **Les UDFs**

L'UDF est un code défini par l'utilisateur dans le langage de programmation C<sup>++</sup>, qui permet d'améliorer les caractéristiques standards du code, et d'étendre les capacités du solveur, ainsi, les UDFs permettent de personnaliser Fluent pour l'adapter à un besoin particulier exigé dans la modélisation ; elles peuvent être utilisées dans diverses applications telles que : la définition des propres conditions aux limites, les propriétés des matériaux, l'ajustement des valeurs calculées à chaque itération, l'initialisation d'une solution, ainsi que la spécification des paramètres du modèle personnalisé telle que le terme source dans l'équation de transport pour un régime donner [42].

- **La méthode VOF**

Dans Fluent, trois modèles Euler-Euler multiphasiques différents sont disponibles : le modèle des mélanges, le modèle Eulérien et le modèle de Volume des Fluides (**VOF**) [41].

La méthode VOF (*Volume Of Fluids*), dite méthode de suivi d'interface évoluant dans le temps, est une technique utilisée pour la simulation d'écoulements d'interface conçue pour deux ou plusieurs liquides non miscibles, il s'agit d'une méthode d'écoulements multiphasique où un seul ensemble d'équations de quantité de mouvement est partagé par les

fluides, et la fraction volumique de chacun des fluides dans chaque cellule de calcul est suivie tout au long du domaine, avec prise en compte de tension de surface, du transfert de masse et de la chaleur entre les phases [41].

L'une des applications typiques incluse dans le modèle est le suivi permanent ou transitoire de toute interface entre un liquide et un gaz, telle que le métal liquide et l'air ambiant.

Dans notre cas, nous supposons deux régions '*deux domaines dans le langage numérique*', la première région représente l'air et la seconde représente la cible, ce qui explique l'hypothèse d'utilisation du modèle VOF.

### III.2.3 Discrétisation des équations dans le volume fini

Comme nous l'avant mentionné précédemment, Le modèle à deux températures est décrit par un système d'équations différentielles aux dérivées partielles non-linéaires couplées, la résolution de ce système nécessite de faire appel aux méthodes numériques, la méthode choisie pour la résolution de ces équations est la méthode des volumes finis.

En analyse numérique, la méthode des volumes finis nécessite la discrétisation du domaine d'étude, c'est-à-dire la subdivision du domaine d'étude en volumes élémentaires appelés maille ou cellules connecté entre eux par des nœuds, l'ensemble des cellules constitue le maillage.

### III.2.4 Conditions initiales et conditions aux limites

Vu que les équations représentent un système non-stationnaire, la résolution de ce système exige d'établir des conditions initiales, pour ce faire, nous avons choisi d'associer aux électrons et aux ions la même température de 300 K qui représente la température ambiante moyenne.

Quant aux conditions aux limites, elle représente l'échange par convection entre le milieu extérieur et la cible étudié [25] :

$$K \cdot (\vec{\nabla}T) \cdot \vec{n} = H(T_{ext} - T) \quad (\text{III.2})$$

H : Coefficient d'échange thermique.

### III.3 Calculs et résultats

#### III.3.1 Conditions opératoires

Les conditions opératoires, concernant le faisceau laser, l'échantillon traité, et l'environnement sont :

- **Le faisceau laser**

C'est un laser Nd-YAG qui émet une radiation infrarouge de longueur d'onde égale à 1064 nm. Le pulse délivré, d'une durée à mi-hauteur (FWHM) de 290 fs, est focalisé sur la surface de l'échantillon sur un spot de 20  $\mu\text{m}$  de diamètre. La fluence correspondant à la densité d'énergie focalisée dans la tâche focale est égale à 35  $\text{J}/\text{m}^2$ .

- **L'échantillon traité**

Tel que décrit par Kotsedi et al. [38,39], le matériau traité est obtenu à partir du dépôt d'une couche mince de molybdène d'une épaisseur de 1  $\mu\text{m}$  sur un substrat en verre. Le dépôt est obtenu sous vide à une pression de  $10^{-7}$ torrs. Les propriétés thermo-physiques du molybdène sont données sur le *tableau (III.1)* :

Désignation	Abréviation	Valeur	Unité
Chaleur spécifique en phase solide	$C_{ps}$	516.7	$\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$
Chaleur spécifique en phase liquide	$C_{pl}$	491.6	$\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$
Facteur de couplage électron-réseau	G	$13 \times 10^{16}$	$\text{Wm}^{-3}\text{K}^{-1}$
Enthalpie d'évaporation à la température d'ébullition	$L_v$	6233062	$\text{J kg}^{-1}$
Enthalpie de fusion	$L_f$	385300	$\text{J kg}^{-1}$
Poids molaire	$M_a$	94.95	$\text{kg kmol}^{-1}$
Coefficient de réflexion dans l'infrarouge	R	0.189	--
Température critique	$T_c$	13573	K
Température de fusion	$T_f$	2896	K
Coefficient pour la conductivité thermique électronique	$B_e$	122	$\text{J m}^{-3}\text{K}^{-2}$
Profondeur de pénétration de la radiation	$\delta$	35	nm
Energie de Fermi	$E_f$	6.77	eV
Conductivité thermique en phase solide	$\kappa_s$	138	$\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$
Conductivité thermique en phase liquide	$\kappa_l$	71.7	$\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$
Densité à l'état solide	$\rho_s$	10200	$\text{kg m}^{-3}$
Densité à l'état liquide	$\rho_l$	9330	$\text{kg m}^{-3}$

*Tableau (III.1) : les paramètres de calcul.*

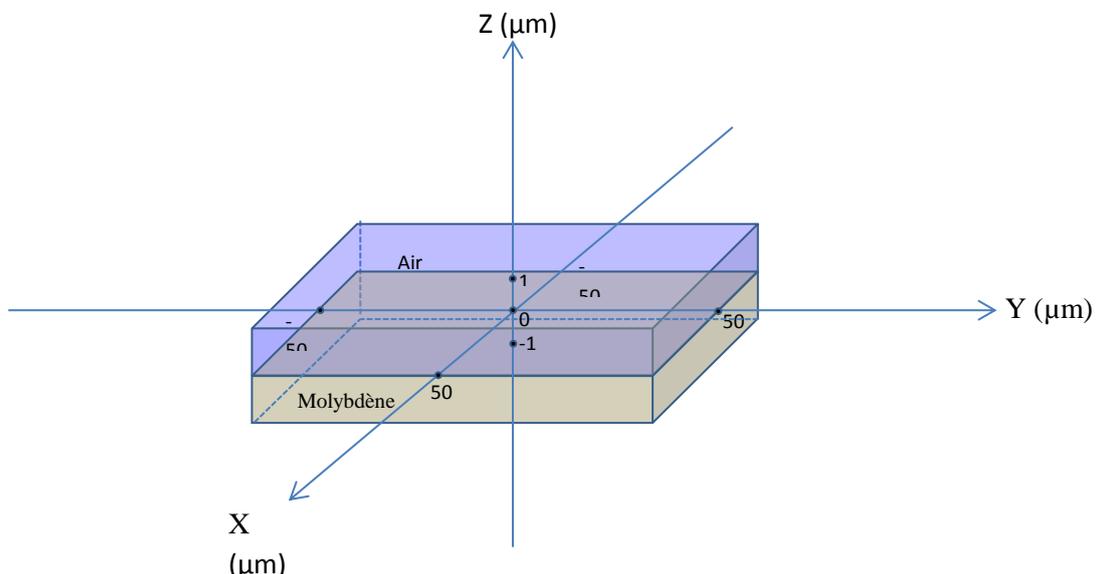
- **L'environnement**

Nous considérons dans notre modélisation un environnement sous des conditions normales de pression (101325 Pa) et de température (300 K).

### III. 3.2 Géométrie du problème

La modélisation commence par la détermination de la géométrie du domaine, son maillage, et la réservation des conditions aux limites. Pour préparer la géométrie nous utilisons le préprocesseur Gambit, associé au logiciel de dynamique des fluides numérique Ansys/Fluent CFD [40,41]. Notre géométrie devra comprendre un sous-domaine pour représenter l'air ambiant, et un autre sous-domaine pour représenter le matériau (Molybdène). Nous représentons sur la *figure (III.4)* le domaine de calcul comprenant l'air et le matériau traité. Les dimensions du champ de calcul sont  $x_{\min} = -50\mu\text{m}$ ,  $x_{\max} = 50\mu\text{m}$ ,  $y_{\min} = -50\mu\text{m}$ ,  $y_{\max} = 50\mu\text{m}$ ,  $z_{\min} = -1\mu\text{m}$ ,  $z_{\max} = 1\mu\text{m}$ .

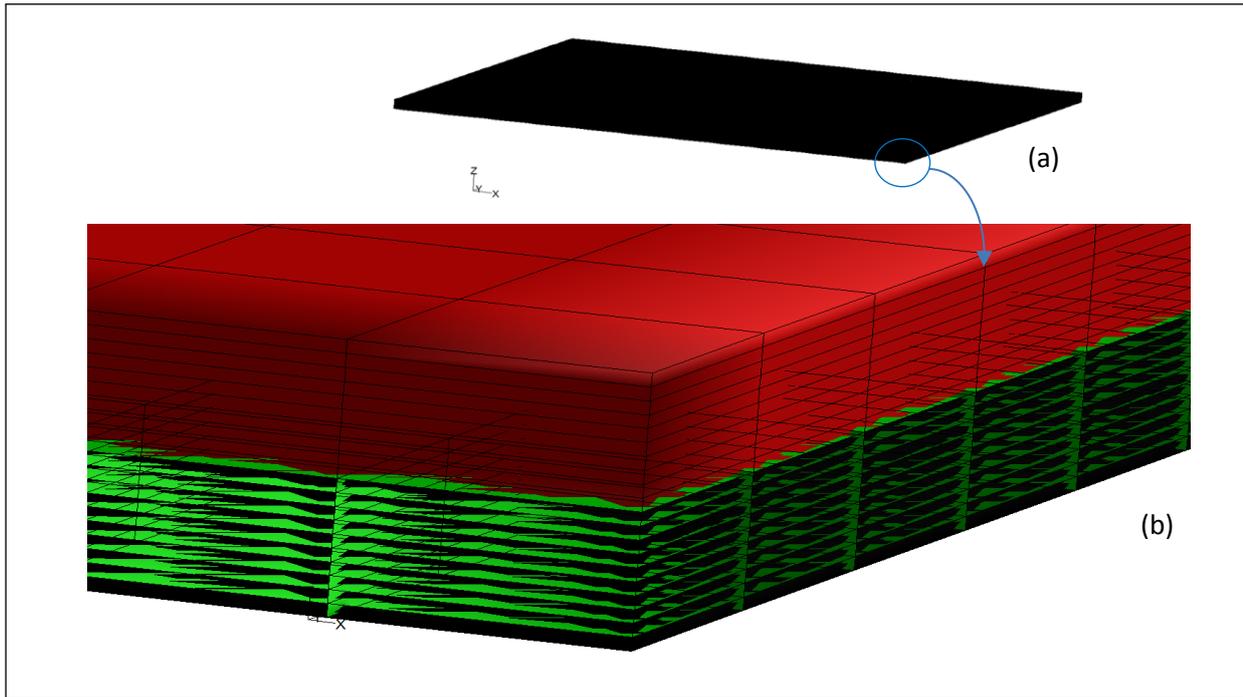
Le faisceau laser est focalisé à l'interface air-matériau (gris foncé) sur une tâche de  $20\mu\text{m}$  de diamètre, ayant pour centre l'origine du repère (0xyz)



**Figure (III.4) :** Dimensions du domaine de calcul.

Le maillage du domaine de calcul comprend le maillage des faces et des volumes. Le domaine de calcul comprend 154500 faces situées sur les frontières du domaine, 50000 cellules contenu dans les deux volumes contenant l'air et le matériau, avec 25000 cellules pour chaque sous-domaine. Enfin, le nombre de nœuds du domaine de calcul est de 54621 nœuds.

Le maillage utilisé est structuré, il est composé de quadrilatères sur les faces et d'éléments hexaédraux dans les deux sous-volumes. La *figure (III.5-a)* montre le maillage utilisé dans nos simulations. Le maillage étant très raffiné, la figure semble uniforme, et ne montre pas les détails du maillage, faisant que les mailles ne sont pas visibles. Pour avoir une idée sur le maillage utilisé, nous présentons sur la *figure (III.5-b)* un agrandissement d'une région située sur un coin du domaine de calcul.



**Figure (III.5) :** Maillage du champ de calcul, avec agrandissement montrant les deux sous domaines : air en rouge, et matériau en vert.

L'agrandissement de la *figure (III.5)* permet de distinguer le maillage situé sur l'épaisseur du matériau suivant la direction Z, dans le sens négatif, et nous pouvons compter dix mailles le long de l'épaisseur de  $1\mu\text{m}$ , ce qui permet de subdiviser l'épaisseur des mailles ayant une dimension de  $100\text{ nm}$  suivant Z.

Les conditions aux limites qui sont appliquées sur le domaine sont :

- La condition dite 'Heat Flux' où le gradient de température est annulé sur les parois du matériau, ce qui permet de maintenir la continuité du transfert de chaleur.
- La condition dite 'Outlet Pressure' sur les parois de l'air, ce qui permet une continuité des conditions atmosphériques au-delà du champ de calcul.

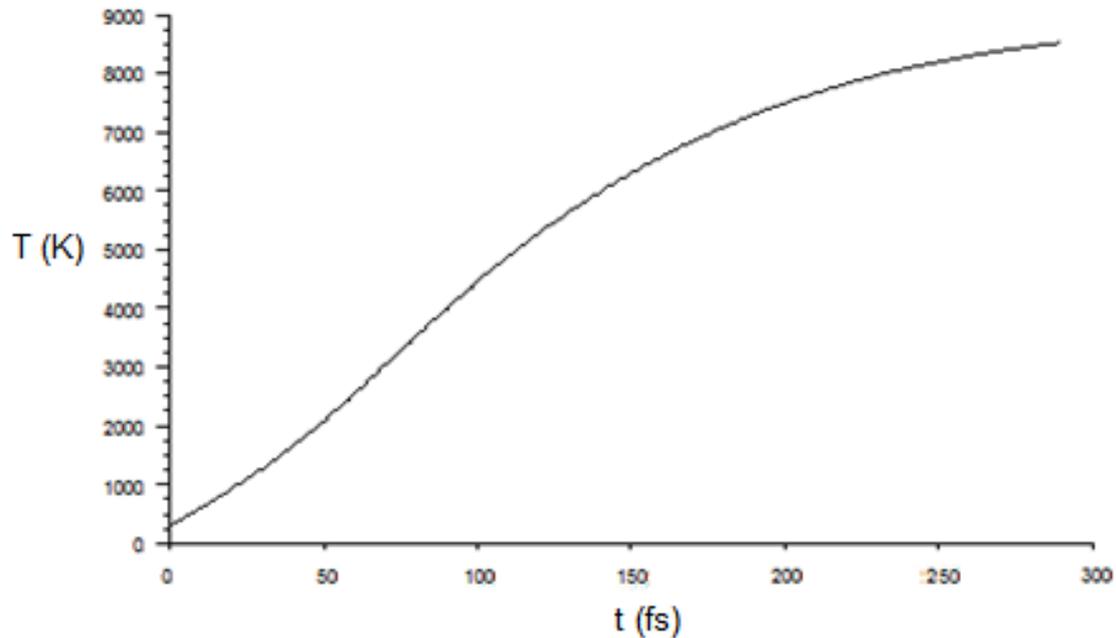
On considère comme condition initiale une température de  $300\text{ K}$  dans tout le domaine de calcul.

### III.3.3 Application du pulse laser

Une première étude a concerné l'application du faisceau laser Nd-YAG pendant une durée de  $290\text{ fs}$  sur l'échantillon de Molybdène représenté dans la *figure (III.4)*.

L'application du modèle à 2T implique que ce sont les électrons libres et liés qui constituent le gaz électronique, qui vont absorber l'énergie laser pendant que les ions

métalliques du réseau ne ressentiront aucun effet à cause de la lenteur du temps réponse à une telle irradiation.

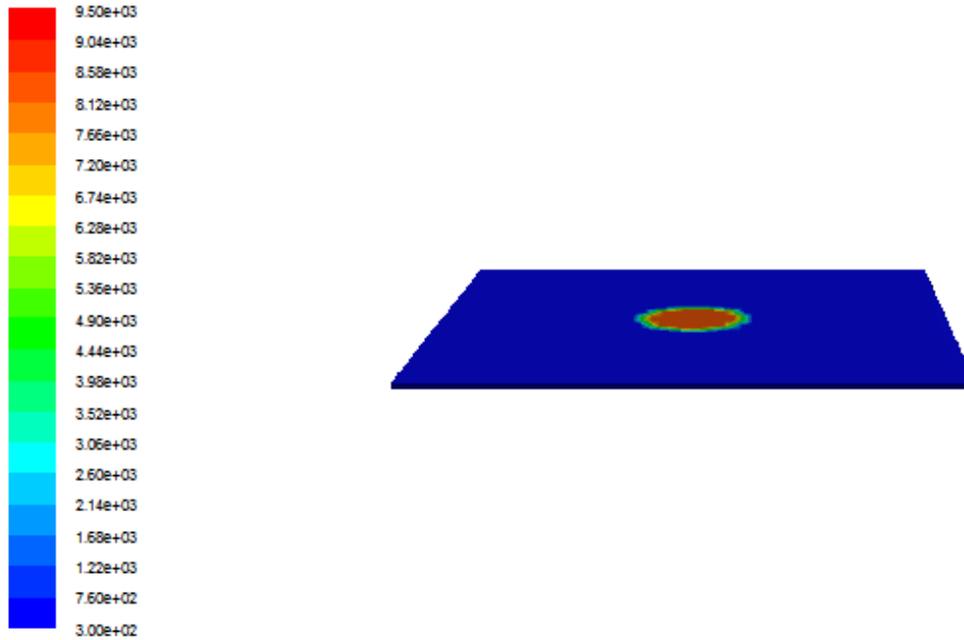


**Figure III.6 :** Evolution du champ de température du gaz d'électrons pendant le pulse laser de 290 fs.

Sur la *figure (III.6)*, nous donnons l'évolution du champ de température dans le gaz électronique. Nous observons une élévation rapide durant les cent premières femtosecondes, puis une élévation modérée jusqu'à 290 fs, où une température extrêmement élevée de l'ordre de 8000 K est atteinte.

Le fait d'atteindre une température de 8000 K par le gaz électronique en un laps de temps aussi court, n'implique pas que le matériau est à la température électronique, ainsi, le matériau ne commencera à recevoir de l'énergie qu'à travers l'échange avec le gaz électronique, bien après la fin du pulse laser.

La *figure (III.7)*, nous montre le champ de températures dans la région irradiée contenant dans la tâche focale du faisceau laser qui s'établit à 20  $\mu\text{m}$  de diamètre. On note d'après le gradient de température observé que la surface de l'échantillon passe rapidement d'une température extrêmement élevée (8000 K) à une température proche de la température ambiante. La région traitée est ainsi extrêmement localisée, ce qui constitue un des avantages de l'utilisation des lasers ultrarapides dans les applications en micro et nanotechnologies.



**Figure III.7 :** Distribution du champ de température sur l'interface Molybdène-air à la fin du pulse laser de 290 fs pour une tâche focale du faisceau laser de 20 $\mu$ m de diamètre et une fluence laser de 35J/m<sup>2</sup>

### III.3.2. Après extinction du pulse laser

Après extinction du pulse laser, c'est le phénomène de relaxation qui prend effet. Les électrons ayant absorbé l'énergie électromagnétique pendant la durée du pulse, vont redistribuer l'énergie accumulée aux ions du réseau, pendant une durée relativement longue, de l'ordre de plusieurs centaines de picosecondes.

Cette redistribution, s'accompagne comme nous le voyons sur la *figure (III.8)*, obtenue par la mise en œuvre de la seconde équation (équations II.4) du modèle à 2T pour le réseau, d'une diminution de la température pendant une durée de plus de 1000 fois la durée du pulse laser.

Ce n'est que dans cet intervalle de temps que les effets thermiques sont 'ressentis' par le matériau, à travers sa capacité calorifique, sa densité, et sa conductivité thermique.

Comme le montre la *figure (III.8)*, le matériau peut durant, la relaxation et la redistribution de l'énergie, passer par les phases vapeur et liquide, en un temps de l'ordre de grandeur de quelques picosecondes. Cela permet d'envisager des traitements dits athermiques, qui permettent l'obtention de cratères ou sillons de qualités très élevées du point de vue formation de bavures, qui sont relativement réduites par ce procédé.

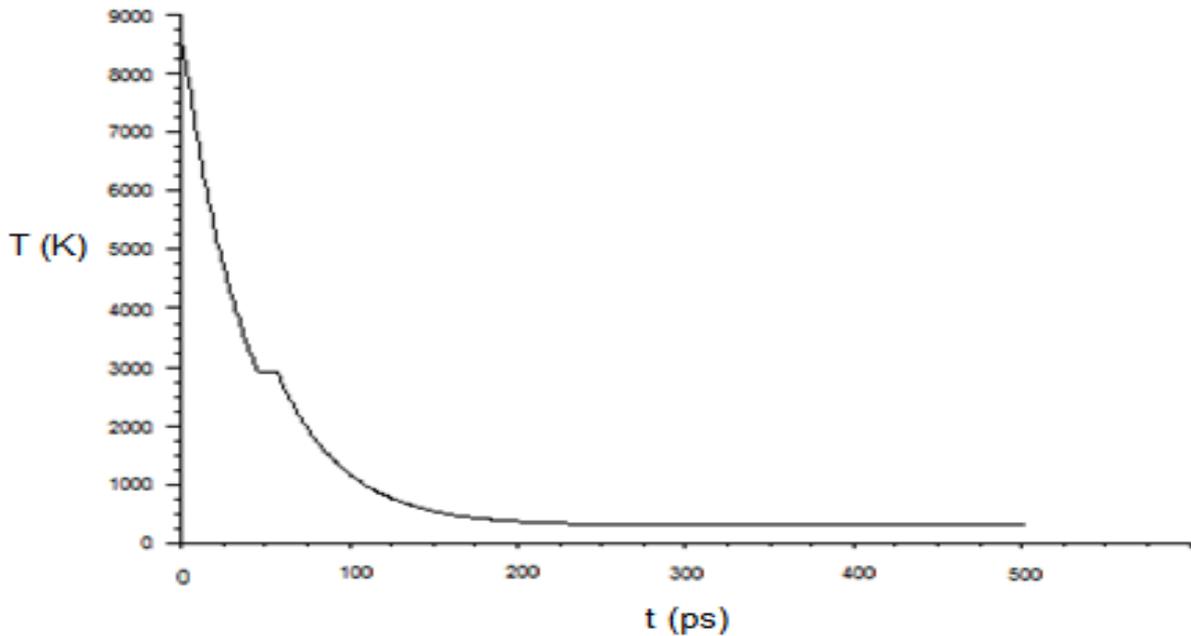


Figure III.8 : Champ de température après extinction du pulse laser (relaxation).

### III.4 Conclusion

L'étude de l'irradiation d'un échantillon de molybdène par un laser émettant à une longueur d'onde de  $1.06 \mu\text{m}$ , et délivrant une impulsion ultracourte d'une durée de 290 fs, à faible fluence, a été effectuée. Une approche purement thermique d'un point de vue théorique, utilisant le préprocesseur Gambit et le processeur Fluent du logiciel CFD ANSYS/FLUENT a permis de, respectivement, construire la géométrie du problème et résoudre numériquement par la méthode des volumes finis l'équation de la chaleur et les conditions aux limites et initiales associées, décrivant le procédé de chauffage dans l'échantillon après application de l'impulsion laser femtoseconde.

Les résultats obtenus ont concerné la distribution du champ de la température sur la surface, et en un point de la surface dont les coordonnées correspondent à l'origine des axes X, Y, et Z. L'évolution de la température au point d'origine durant le pulse laser et en son absence montre une allure correspondant aux résultats donnés dans la littérature. Ces résultats sont obtenus à travers le modèle développé qui est basé sur la théorie introduite au chapitre II. Nous montrons que les températures du gaz d'électrons sont très élevées, et sont atteintes en un laps de temps extrêmement court ne permettant pas la réaction des ions du réseau à l'onde électromagnétique. Par la suite bien après la fin de la sollicitation électromagnétique le matériau est chauffé en une région très localisée dans le voisinage immédiat de la zone d'impact du faisceau laser.

## Conclusion générale

Dans ce manuscrit nous présentons de manière générale le mécanisme de l'ablation des métaux par impulsions laser ultrarapides. La majeure partie a été consacrée à la compréhension d'un cas particulièrement intéressant : l'irradiation par laser à impulsion femtoseconde.

Le procédé du chauffage ainsi que les principales caractéristiques de transformation de la matière notamment la création rapide de la vapeur et la formation de la phase plasma ainsi que la structuration de surface, ont été introduit.

L'aspect caractérisant l'interaction métal-laser femtoseconde est le fait que de grandes quantités d'énergie optique peuvent être déposées dans le métal en un temps beaucoup plus court que le temps nécessaire à la thermalisation de l'énergie, ce qui implique un arrachement très rapide de matière, de sorte que le taux de couplage avec le réseau dans ce régime d'impulsion est très faible. Autrement dit, la propagation de la chaleur dans le matériau est négligeable. Un tel temps d'interaction infiniment court de vaporisation de la matière ne peut pas être considéré par une fusion thermique classique, ce qui permet d'admettre que le phénomène est non-thermique, ou athermique.

Le chauffage par ablation femtoseconde est décrit par un modèle à deux températures basé sur l'équation de transfert de chaleur de Fourier. Ce modèle est constitué de deux équations différentielles paraboliques couplées par le terme d'échange entre les deux sous-systèmes à savoir le gaz d'électrons et le réseau ionique.

Les mécanismes ultrarapide de chauffage dans le matériau métallique ont été étudiés par une approche basée sur la simulation numérique, où l'étude du chauffage pas impulsion ultracourte a été menée sur une lame de Molybdène.

Le travail effectué consiste en la construction d'une géométrie représentant le domaine de calcul, grâce au préprocesseur Gambit, puis résoudre les équations couplées par le processeur Fluent. Les résultats obtenus concernant la distribution du champ de températures montrent une conformité avec ceux obtenus par d'autres auteurs.

Les applications pouvant être envisagées avec un laser à impulsions femtosecondes tirées à une fréquence donnée (quelques Mhz) ouvrent la voie à la structuration nanométrique

pouvant être appliquée à des techniques de pointe pour l'exploitation de l'énergie solaire par exemple.

L'absence de la phase liquide dans l'ablation femtoseconde, nous permet un meilleur contrôle lors du processus de forage, ceci ouvre l'opportunité à l'étude de l'ablation avec des lasers au-delà du femtoseconde notamment avec la mise en œuvre des lasers attoseconde.

Cette étude pourrait être un prélude pour une investigation plus complète, qui concernerait d'autres applications des impulsions laser femtosecondes dans le domaine de la micro fluidique, les MEMs, etc.

## Bibliographie

- [1] SOVEJA, Adriana-Florina. Modélisation du processus de texturation par faisceau laser : Approches expérimentale et numérique. *Thèse de doctorat*, U. Bourgogne, "Politehnica" Timisoara (2007)
- [2] M. von Allmen. Laser drilling velocity in metals. *Applied physics*. vol. 47, n°12, December 1976.
- [3] F. Barthélémy, P. Christmann. Panorama mondial 2010 du marché du molybdène. Rapport final. *BRGM/RP-60204-FR*, 59 p., 14 fig., 5 tabl. 2011.
- [4] Jérôme Kasparian, Les lasers de puissance à impulsions ultracourtes. *Futura-Sciences*, 25/2/2008. Disponible sur : <http://www.futura-sciences.com/magazines/matiere/infos/dossiers/d/physique-lasers-puissance-impulsions-ultracourtes-764/page/2/>
- [5] DI MAIO, Yoan. Étude de l'interaction laser-matière en régime d'impulsions ultra-courtes : Application au micro-usinage de matériaux à destination de senseurs. *Thèse de doctorat*, U. Jean Monnet Saint-Étienne (2013)
- [6] DJOUDER, Madjid. Modélisation de la formation des nanostructures obtenues par ablation laser en régime femtoseconde. *Thèse de doctorat*, U. Mouloud Mammeri Tizi-Ouzou (2012)
- [7] Jérôme Kasparian. Les lasers de puissance à impulsions ultracourtes. *Futura-Sciences*, P. 1-12, 2008. Disponible en format PDF sur : <http://www.futura-sciences.com/magazines/matiere/infos/dossiers/d/physique-laserspuissance-impulsions-ultracourtes-764/> .
- [8] Matthew S. Brown, Craig B. Arnold. Fundamentals of Laser-Material Interaction and Application to Multiscale Surface Modification, chapter 4. *Springer-Verlag Berlin Heidelberg*, P. 91-120, 2010.
- [9] Peter Schaaf. Laser nitriding of metals. *Progress in Materials Science*, 47, P. 1-161, 2002.
- [10] E. G. Gamaly, A. V. Rode, V. T. Tikhonchuk, B. Luther-Davies. Ablation of solids by femtosecond lasers: ablation mechanism and ablation thresholds for metals and dielectrics. *Phys. Rev. A*, January 2001.
- [11] C. Kittel, physique de l'état solide, *Dunod* (1998)
- [12] M. Fourier. Mémoire sur la propagation de la chaleur dans les corps solides. *Nouveau Bulletin des sciences par la Société philomathique de Paris* 6, 112\_116, 1808. Disponible sur : <http://pagesperso-orange.fr/alta.mathematica/fourier1807.html.17>

- [13] AMIN CHALHOUB, Eliane. Etude des processus thermophysiques en régime d'interaction laser-matière nanoseconde par pyro-réfectométrie rapide. *Thèse de doctorat*, U. Orléans (2010)
- [14] Lonnie Lucas, Jim Zhang, Femtosecond laser micromachining: A back-to-basics primer. *Applied Energetics*, January 2012.
- [15] J.-L. Dumas. Interaction d'un faisceau laser avec une cible métallique - Première partie Etude de l'échauffement et de la vaporisation de la cible. *Revue de Physique Appliquée*, 5 (6), P.795-809, 1970.
- [16] Guillaume Petite. Mécanismes fondamentaux de l'ablation laser femtoseconde en « flux intermédiaire ». Laboratoire des Solides Irradiés, UMR 7642 CEA/DSM, CNRS/SPM et Ecole polytechnique F-91128, Palaiseau. Disponible sur : [http://arxiv.org/ftp/cond\\_mat/papers/0502/0502132.pdf](http://arxiv.org/ftp/cond_mat/papers/0502/0502132.pdf)
- [17] B.N. Chichkov, C. Momma, S. Nolte, F. von Alvensleben, A. Tünnermann. Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids. *Applied physics A*, 63, P. 109-115, 1996.
- [18] T. Niu, Louisiana Tech University. A Hyperbolic Two-step Model Based Finite Difference Method for Studying Thermal Deformation in a Micro Thin Film Heated by Ultrashort-pulsed Lasers. *Louisiana Tech University*, 9780549261131, ProQuest, 2007, 143 p.
- [19] S. I. Anisimov. Effect of very short laser pulses on absorbing substances. *Soviet physics JETP*, volume 31, n°1, P. 337-340, July 1970.
- [20] S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, T. L. Perel'man. Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulse. *Soviet physics JETP*, vol. 39, n°2, P. 776-781, August 1974.
- [21] T. Q. Qiu, C. L. Tien. Heat transfer mechanisms during short-pulse laser heating of metals. *ASME J. Heat Transfer*, vol.115, n°4, P. 835-841, November 1993.
- [22] S. Amorus, B. Bruzzese, X. Wang, N N Nedialkov, P. A. Atanasov. Femtosecond laser ablation of nickel in vacuum. *Applied physics D*, 40, P. 331-340, 2007.
- [23] TULL, Brian Robert. Femtosecond Laser Ablation of Silicon: Nanoparticles, Doping and Photovoltaics. *Thèse de doctorat*, U. Harvard (2007)
- [24] D. Von der Linde, K. Sokolowski-Tinten, J. Bialkowski. Laser-solid interaction in the femtosecond time regime. *Applied Surface Science*, 109/110, P. 1-10, 1997.
- [25] VALETTE, Stéphane. Effets thermiques dus à l'interaction laser-matière dans les métaux en régime femtoseconde. *Thèse de doctorat*, U. Jean Monnet, des Mines Saint-Etienne (2003)
- [26] Xin Zhao, Yung C Shin. A two-dimensional comprehensive hydrodynamic model for femtosecond laser pulse interaction with metals. *Applied physics D*, 45, 105201, P. 12, 2012.

- [27] Roman V. Dyukin, George A. Martsinovskiy, Olga N. Sergaeva, Galina D. Shandybina, Vera V. Svirina, Eugeny B. Yakovlev. Interaction of Femtosecond Laser Pulses with Solids: Electron/Phonon/Plasmon Dynamics, Chapter 7. *licensee InTech*, 2012.
- [28] Koji Sugioka, Ya Cheng. Femtosecond laser processing for optofluidic fabrication. *Critical review*, 2012.
- [29] G. Mainfray, C. Manus. Les Transitions Multiphotoniques. *Journal de Physique Colloques*, 39 (C1), P.C1-1-C1-16, 1978.
- [30] M. Casalino, Near-Infrared Sub-Bandgap All-Silicon Photodetectors. *International Journal of Optics and Applications*, Vol. 2, n°1, pp. 1-16, 2012.
- [31] J. Hohlfeld, S. –S. Wellershoff, J. Güdde, U. Conrad, V. Jähnke, E. Matthias. Electron and lattice dynamics following optical excitation of metals. *Chemical Physics*, 251, P. 237-258. 2000.
- [32] I. H. Chowdhury, X. Xu. Heat Transfer in Femtosecond Laser Processing of Metal. *Numerical Heat Transfer, Part A*, 44, P. 219-232, 2003.
- [33] Feng Chen, Guangqing Du, Qing Yang, Jinhai Si, Hun Hou. Ultrafast Heating Characteristics in Multi-Layer Metal Film Assembly Under Femtosecond Laser Pulses Irradiation, Two Phase Flow, Phase Change and Numerical Modeling, Dr. Amimul Ahsan (Ed.), ISBN: 978-953-307-584-6, *In Tech*, 2011.
- [34] J. K. Chen, J. E. Beraun. Numerical study of ultrashort laser pulse interactions with metal films. *Numerical heat transfer, part A*, 40: P. 1-20, 2001.
- [35] Li Yang, Ching-Yue Wang, Wei Yang. Numerical Simulation and Analysis on 3D Temperature Field of the Metal Ablated with Femtosecond Pulse Laser. *Journal of Physics: Conference Series*, 276, 012032, P. 1-5, 2011.
- [36] B. Rethfeld, K. Sokolowski-Tinten, D. von der Linde, S. I. Anisimov. Ultrafast thermal melting of laser-excited solids by homogeneous nucleation. *Physical Review B*, volume 65, 092103, 2002.
- [37] M. B. Agranat, S. I. Anisimov, S. I. Ashitkov, A. V. Ovchinnikov, P. S. Kondratenko, D. S. Sitnikov, V. E. Fortov. On the Mechanism of the Absorption of Femtosecond Laser Pulses in the Melting and Ablation of Si and GaAs. *JETP Letters*, vol. 83, n°11, P. 501-504, 2006.
- [38] L. Kotsedi, Z. Y. Nuru, P. Mthunzi, T. F. G. Muller, S. M. Eaton, B. Julies, E. Manikandan, R. Ramponi, M. Maaza. Femtosecond laser surface structuring and oxidation of chromium thin coatings: Black chromium. *Applied Surface Science*, 321, P. 560-565, 2014.
- [39] L. Kotsedi, P. Mthunzi, S. M. Eaton, Z. Y. Nuru, P. Sechoghela, N. Mongwaketsi, R. Ramponi, M. Maaza. Femtosecond laser surface structuring of molybdenum thin films.
- [40] [www.ansys.com](http://www.ansys.com)

[41] [www.ansys.com](http://www.ansys.com)

[42] [www.ansys.com](http://www.ansys.com)

[43] RANARIJAONA, Zo Alain. Etude des écarts à l'équilibre thermique dans les plasmas d'arc. *Thèse de doctorat*, U. Toulouse (2011)