



**HAL**  
open science

# Dynamique de la formation de nanostructures périodiques par impulsions laser ultrabrèves sur une surface métallique

Mourad Bounhalli

► **To cite this version:**

Mourad Bounhalli. Dynamique de la formation de nanostructures périodiques par impulsions laser ultrabrèves sur une surface métallique. Autre [cond-mat.other]. Université Jean Monnet - Saint-Etienne; Brandenburgische Technische Universität (Cottbus, Allemagne), 2011. Français. NNT : 2011STET4024 . tel-00704856v1

**HAL Id: tel-00704856**

**<https://theses.hal.science/tel-00704856v1>**

Submitted on 6 Jun 2012 (v1), last revised 24 Sep 2012 (v2)

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Université Jean Monnet de Saint-Etienne

# THESE

Présentée pour obtenir le grade de

Docteur en Sciences

Par

**Mourad BOUNHALLI**

## **DYNAMIQUE DE LA FORMATION DE NANOSTRUCTURES PERIODIQUES PAR IMPULSIONS LASER ULTRABREVES SUR UNE SURFACE METALLIQUE**

Soutenu devant la commission d'examen :

Pr. Thierry SARNET	Rapporteur	Université de la Méditerranée Aix-Marseille II
Pr. Peter SCHAAF	Rapporteur	Université Technologie Ilmenau
Pr. Florence GARRELIE	Examineur	Membre de l'institut universitaire de France, Université Jean Monnet Saint-Etienne
Dr. Jean-Philippe Colombier	Examineur	Université Jean Monnet Saint-Etienne
Dr. Rodica BORCIA	Examineur	Université Brandendourg Technique Cottbus
Pr. Florent PIGEON	Directeur de thèse	Université Jean Monnet St-Etienne
Pr. Jüergen REIF	Directeur de thèse	Université Brandendourg Technique Cottbus



# Remerciements

Ce travail a été effectué dans le cadre d'une collaboration entre deux laboratoires : le laboratoire Hubert Curien (LaHC) de l'université de Jean Monnet à Saint Etienne et le laboratoire PhysicexperimentII de l'université "Brandendourg technique" à Cottbus. Tout d'abord, j'adresse mes remerciements à mes directeurs de thèse, le Professeur Florent Pigeon et le Professeur Jüergen Reif qui sont également les directeurs des deux laboratoires en question. Je leur suis reconnaissant de m'avoir donné la chance de travailler au sein de leurs équipes et de m'avoir permis, durant ces trois années, de mener cette thèse dans les meilleures conditions de travail et d'encadrement. Je remercie sincèrement tous les membres de mon jury de soutenance pour l'intérêt qu'ils ont accordé à ce travail, en particulier les professeurs Peter Schaaf et Thierry Sarnet qui ont accepté d'être mes rapporteurs de thèse. Je remercie également le docteur Rodica Borcia pour sa participation au jury de ma thèse. Je remercie vivement le Professeur Florence Garrelie et le Docteur Jean-Philippe Colombier pour leurs conseils judicieux et leurs commentaires scientifiques qui m'ont beaucoup aidé tout au long de mon travail. Leurs corrections et leurs remarques ainsi que les divers échanges que nous avons eus ensemble à propos de mon travail ont permis d'en augmenter largement la qualité. Je souhaiterais également remercier le Professeur Olivier Parriaux et le Professeur Razvan Stoian de m'avoir permis de bénéficier de leurs expériences, ainsi que toutes les personnes permanentes du laboratoire. Un grand merci pour le personnel technique, Nicolas Faure et Stéphanie Reynaud qui m'ont apporté leur aide durant la réalisation des différentes expériences et qui ont fait preuve de beaucoup de patience lors des centaines de prises d'analyses "MEB et AFM". Je n'oublierais pas non plus de rendre hommage à tous les membres de l'équipe collaboratrice au sein du laboratoire de Cottbus. En particulier, je remercie le future Docteur Olga Varlamova et le Docteur Reiner Schmid de m'avoir souvent soutenue durant les problèmes liés à la physique expérimentale surtout au laser femtoseconde, mais aussi d'avoir su partager leurs connaissances avec moi. Je tiens, par ailleurs, à remercier l'ensemble de mes collègues du laboratoire Hubert Curien et du laboratoire PhysicexperimentII. J'adresse de même, un grand merci au personnel administratif des deux laboratoires. En particulier Madame Marion Borrmann qui s'est occupé de la partie administrative de ma mission à Cottbus. Je profite également de cette page pour saluer les docteurs Ismahane HAMDI et A. El Fatimy. Je souhaiterais enfin remercier pour tous ceux qui ont contribué de près ou de loin à mon travail et que je n'ai pas cités ici.

*A ma femme, mon futur bébé, et mes parents*

## Table des matières

---

<b>Chapitre I : Formation des LIPSS : Un état de l'art.....</b>	<b>4</b>
1. Introduction .....	5
2. Interaction laser-matière en régime laser femtoseconde.....	6
2.1. Les différents processus d'interaction laser matière.....	6
2.1.1. Structure électronique des matériaux.....	6
2.1.2. Processus d'interaction d'un laser femtoseconde avec les métaux.....	8
2.1.3. Epaisseur de peau.....	10
2.2. Mécanismes d'absorption d'énergie laser (fs) dans un métal.....	11
2.2.1. Excitation plasmonique dans les métaux en mode femtoseconde.....	11
2.2.1.1. Plasmons de surface .....	11
2.2.1.2. Excitation des plasmons de surface .....	12
2.2.2. Relaxation électron-phonon : Modèle à deux températures.....	14
3. Formation des LIPSS.....	18
3.1. Phénoménologie.....	18
3.1.1. Orientation des LIPSS.....	18
3.1.2. Influence des paramètres expérimentaux (dose d'énergie et nombre d'impulsions) sur la formation des LIPSS.....	21
3.2. Les différents modèles.....	22
3.2.1. Vue générale.....	22
3.2.2. Modèle classique.....	23
3.2.3. Approches dynamiques.....	26
3.2.3.1. Modifications transitoires des propriétés optiques.....	26
3.2.3.2. Auto-organisation.....	27
3.2.3.3. Rôle des plasmons de surface sur la formation des LIPSS.....	29
3.2.3.4. Dépôt périodique de l'énergie.....	29
a) Réseau de couplage pour l'impulsion suivante.....	30
b) Variation périodique des propriétés viscoélastiques.....	30
4. Conclusion.....	31
<b>Chapitre II : Dispositifs expérimentaux.....</b>	<b>32</b>
1. Introduction.....	33
2. Systèmes laser femtoseconde.....	34
2.1. Chaîne laser femtoseconde.....	34
2.1.1. Laboratoire Hubert Curien (Saint Etienne).....	34
2.1.2. Laboratoire LS/Chair Experimentalphysik II (Cottbus).....	39
2.2. Mise en forme temporelle des impulsions femtosecondes.....	40
2.2.1. Filtrage spectral variable par modulateur spatial de la lumière (SLM).....	40
2.2.2. Génération de doubles impulsions par Interféromètre Michelson.....	44

## Table des matières.

2.3. Caractérisation temporelle des impulsions.....	47
2.3.1. Auto-cross corrélation.....	47
2.3.2. Caractérisation spatiale du faisceau laser.....	50
2.4. Filtrage spatial du faisceau : système afocal.....	51
3. Dispositif d'irradiation laser.....	52
3.1. Montage expérimental.....	52
3.2. Réglages.....	53
3.3. Détermination de la fluence laser.....	56
4. Caractérisation ex situ des échantillons.....	57
4.1. Microscope Optique.....	57
4.2. Microscope électronique à balayage « MEB ».....	58
4.3. Microscope à force atomique « AFM ».....	60
4.4. Résumé.....	63
5. Formation de LIPSS sur un échantillon de Tungstène : effet de la fluence laser.....	64
6. Conclusion.....	68

## **Chapitre III : Rôle de l'excitation du plasmon de surface sur la formation des LIPSS..... 69**

1. Introduction.....	70
2. Démarche expérimentale suivie .....	71
2.1. Préparation d'échantillons.....	71
a. Méthode de fabrication des réseaux de diffraction.....	71
b. Choix de la profondeur du réseau.....	73
2.2. Condition d'irradiation laser .....	74
3. Rôle du couplage laser-matière sur la formation des LIPSS.....	75
4. Analyse des Résultats .....	78
4.1. Calcul de la longueur d'onde du plasmon pour Ni.....	78
4.2. Modification des propriétés optiques par une excitation laser ultracourte.....	79
5. Conclusion .....	83

## **Chapitre IV : Influence du couplage électron phonon sur la formation des LIPSS..... 84**

1. Introduction.....	85
2. Rôle du couplage électron-phonon sur l'amplitude des LIPSS.....	86
2.1. Procédures expérimentales.....	86
2.2. Résultats : Influence des propriétés des matériaux sur l'amplitude des LIPSS....	87
2.3. Discussion : Influence de la température électronique sur le couplage électron phonon en formation des LIPSS .....	93
3. Conclusion.....	97

<b>Chapitre V : Dynamique de la formation des LIPSS : rôle de la relaxation électron-phonon (Expérience pompe-sonde).....</b>	<b>98</b>
1. Introduction.....	99
2. Motivation de l'étude.....	100
3. Irradiation par paires d'impulsions avec un délai de séparation.....	101
3.1. Aluminium.....	101
3.1.1. Conditions expérimentales.....	101
3.1.2. Résultats des variations de la morphologie de la surface d'Al.....	102
3.2. Tungstène.....	104
3.2.1. Conditions expérimentales.....	104
3.2.2. Résultats des variations de la morphologie de la surface du W.....	104
4. Discussion.....	106
5. Conclusion.....	111
<b>Conclusion générale.....</b>	<b>112</b>
<b>ANNEXE.....</b>	<b>115</b>
<b>Références Bibliographiques.....</b>	<b>120</b>



## Table des figures

---

<b>Figure 1.1 :</b> Figure 1.1 : Structure de bande pour les différents matériaux : diélectrique, semi-conducteur et métaux, avec les différentes bandes d'énergie .....	7
<b>Figure 1.2 :</b> Configuration pour l'excitation de plasmons de surface par un prisme [Ott68].....	13
<b>Figure 1.3 :</b> Schéma de principe de l'excitation des plasmons de surface à la surface d'un réseau de diffraction [Bon06].....	14
<b>Figure 1.4 :</b> Evolution temporelle de la température des électrons ( $T_e$ ) et de réseau ( $T_i$ ), après une irradiation laser femtoseconde de durée d'impulsion de 120 fs centrée à 800 nm avec une intensité de $I_0=5 \times 10^{12}$ W/cm <sup>2</sup> sur une cible de cuivre [WHG99].....	17
<b>Figure 1.5 :</b> Comparaison de l'évolution temporelle des températures des électrons et du réseau entre le Nickel et l'Or dans les mêmes conditions que celles de utilisées dans la figure 1.4 [WHG99].....	17
<b>Figure 1.6 :</b> Observation de deux structures LIPSS présentant une orientation différente par rapport à la longueur d'onde (double flèche) après d'une irradiation laser par $10^3$ impulsions femtosecondes et $10^{12}$ W/cm <sup>2</sup> sur une cible de BaF <sub>2</sub> [Rei06].....	19
<b>Figure 1.7 :</b> Images MEB montre l'orientation des LIPSS en fonction de la polarisation de faisceau laser. Une irradiation d'une surface de CaF <sub>2</sub> avec les différentes polarisations de faisceau laser, les images : (a), (b), (c), (d), (e) (f) et (g) produites par l'accumulation de $3 \times 10^3$ impulsions et $8.3 \text{ W/cm} \times 10^{12}$ . Images (g) et (f) ont été produits par l'accumulation de $5 \times 10^3$ impulsions à la même énergie de $8.3 \text{ W/cm} \times 10^{12}$ [VCR07].....	20
<b>Figure 1.8 :</b> Différents types de LIPSS à la surface du cuivre en fonction de la fluence laser et du nombre d'impulsions d'après [Gui09].....	22
<b>Figure 1.9 :</b> Géométrie du faisceau laser incident sur une surface rugueuse [Cos06].....	24
<b>Figure 1.10 :</b> Comparaison entre les résultats expérimentaux et les calculs théoriques : (a) irradiation d'une surface de silicium avec 5 impulsions et une fluence de $0.42 \text{ J/cm}^2$ . (b) 2D-FT de l'image (a) montre des LIPSS (LSFL) avec des périodes allant de 650 à 750 nm, (c) efficacité de dépôt de l'énergie $\eta$ (k) dans l'espace de Fourier selon le modèle de Sipe-drude pour le silicium [BRK11].....	25
<b>Figure 1.11 :</b> Chronologie des différents processus dans le cas d'une interaction laser-diélectrique..	28
<b>Figure 2.1 :</b> Description des différents éléments de la chaîne laser femtoseconde amplifiée utilisée au LaHC.....	35
<b>Figure 2.2 :</b> Principe de l'amplification à dérive de fréquence.....	36
<b>Figure 2.3 :</b> Schéma de principe de l'amplificateur multipassage [Gui09].....	37

Liste des figures.

<b>Figure 2.4 :</b>	Schéma de principe de l'amplificateur régénératif [Gui09].....	<b>38</b>
<b>Figure 2.5 :</b>	Configuration « 4-f » de la mise en forme d'impulsion, $M(\omega)$ modulateur SLM placé au plan de Fourier, deux réseaux, deux lentilles et $E_{int}(t)$ l'impulsion d'entrée et $E_{out}(t)$ l'impulsion de sortie.....	<b>41</b>
<b>Figure 2.6 :</b>	Le modulateur de phase SLM constitué de deux électrodes d'indium dopé à l'étain (ITO) et des cristaux liquides entre les deux électrodes (a). (b) montre un changement de l'orientation des cristaux liquides en présence et en absence d'une tension, d'après [WAB07].....	<b>42</b>
<b>Figure 2.7 :</b>	Illustration schématique de la mise en forme temporelle d'une impulsion ultra-courte par le retardement de différentes composantes spectrales dispersées dans un masque de phase SLM, situé dans le plan de Fourier d'après [WAB07].....	<b>44</b>
<b>Figure 2.8 :</b>	Principe de l'interféromètre de Michelson.....	<b>45</b>
<b>Figure 2.9 :</b>	Schéma de principe de fonctionnement du corrélateur, composé d'une lentille, un diaphragme pour filtrer le signal, une photodiode, un cristal BBO et deux miroirs dont un est fixe et l'autre mobile sur une platine permettant d'avoir un délai entre deux impulsions[SGL87].....	<b>48</b>
<b>Figure 2.10 :</b>	(a) schéma de principe de l'auto-corrélation, (b) schéma de principe de cross-corrélation [SGL87].....	<b>49</b>
<b>Figure 2.11 :</b>	Image des deux faisceaux issus du Michelson avant la correction de l'alignement avec les deux miroirs fixe et mobile de Michelson (différente intensité et la taille pour les deux faisceaux).....	<b>50</b>
<b>Figure 2.12 :</b>	Image de deux faisceaux issus de Michelson après la correction de l'intensité avec l'alignement de deux faisceaux par deux miroirs fixe et mobile de Michelson (même intensité sur les deux faisceaux).....	<b>51</b>
<b>Figure 2.13 :</b>	Image de deux faisceaux laser issus de Michelson avec un bon recouvrement de deux faisceaux.....	<b>51</b>
<b>Figure 2.14 :</b>	Système de filtrage spatial de faisceau (système afocal).....	<b>52</b>
<b>Figure 2.15 :</b>	Dispositif expérimental utilisé au cours de notre expérience.....	<b>52</b>
<b>Figure 2.16 :</b>	Images réalisées par microscopie optique d'un échantillon d'innox irradié par 10 impulsions laser femtoseconde avec une puissance laser de moyenne 9.2 mW. Les images montrent la variation du diamètre de l'impact $d$ en fonction de la distance entre la lentille et l'échantillon ( $L$ ).....	<b>54</b>
<b>Figure 2.17 :</b>	Exemple de l'évolution de la surface ablatée en fonction de logarithme de l'énergie pour deux matériaux Au et Ni.....	<b>56</b>
<b>Figure 2.18 :</b>	Principe de fonctionnement du microscope à balayage (MEB).....	<b>59</b>
<b>Figure 2.19 :</b>	Image MEB montrant des LIPSS formées à la surface d'une cible de Ruthénium irradié par un laser femtoseconde.....	<b>60</b>

Liste des figures.

<b>Figure 2.20 :</b> Schéma de principe du microscope AFM montrant la détection de la déflexion du levier par faisceau laser réfléchi vers un détecteur. ....	<b>61</b>
<b>Figure 2.21 :</b> Influence de la forme spatiale du faisceau gaussien sur la zone d'apparition des LIPSS, l'image présente un échantillon de tungstène irradié avec une fluence de 1.88 J/cm <sup>2</sup> et 50 impulsions.....	<b>65</b>
<b>Figure 2.22 :</b> Influence de la fluence sur l'apparition des LIPSS sur le tungstène avec 50 impulsions pour une gamme de fluence allant de 0.06 à 1.88 J/cm <sup>2</sup> .....	<b>66</b>
<b>Figure 2.23 :</b> Fluence en fonction de la densité de LIPSS, calculée sur les taches irradiées présentées sur les images de la figure 2.22.....	<b>67</b>
<b>Figure 3.1 :</b> Principe de la photolithographie.....	<b>72</b>
<b>Figure 3.2 :</b> a) Représente une photo (sous éclairage naturel) de l'ensemble des échantillons et b) image MEB d'un réseau avec une période de $\Lambda_G = 560$ nm.....	<b>73</b>
<b>Figure 3.3 :</b> Calcul de l'efficacité de la réflexion d'ordre zéro par des réseaux à différentes épaisseurs.....	<b>74</b>
<b>Figure 3.4 :</b> Irradiation du réseau sous incidence normale à une fluence de 1.42 J/cm <sup>2</sup> avec une seule impulsion laser femtoseconde. (a) polarisation TE : le champ électrique est parallèle au réseau. (b) polarisation TM : le champ électrique est perpendiculaire au réseau. $\Lambda$ et $\sigma$ sont respectivement la période et l'épaisseur du réseau.....	<b>75</b>
<b>Figure 3.5 :</b> Images MEB des échantillons avec les différentes périodes de réseau de 710 nm (a), 790 nm (b) et 760 nm (c, d) irradiés avec une seule impulsion laser femtoseconde polarisée TM, et une fluence de 1.42 J/cm <sup>2</sup> . La polarisation du laser est représentée schématiquement par les doubles flèches.....	<b>76</b>
<b>Figure 3.6 :</b> Densité des LIPSS en fonction de la période du réseau sur un substrat de nickel, avec une polarisation TM (a, c) et une polarisation TE (b, d). La fluence du laser est de 1.42 J / cm <sup>2</sup> (a, b) et 0.97 J / cm <sup>2</sup> (c, d). La densité des LIPSS est mesurée par le rapport entre la surface couverte par les structures fines LIPSS et la surface totale de l'impact laser.....	<b>77</b>
<b>Figure 3.7 :</b> (a) Longueur d'onde plasmon calculée dans le plan complexe de permittivité diélectrique. $\lambda_{SP} = 750$ nm est représentée par la courbe en vert et $\lambda_{SP} = 760$ nm par la courbe en bleue pointillée. La valeur attendue est (792 nm) indiquée en noir. L'ensemble des solutions possibles est tracé en fonction des fréquences plasma utilisées dans le modèle de Drude-Lorentz (b).....	<b>81</b>
<b>Figure 4.1 :</b> Images MEB, pour différents métaux (Ru, W, Ni et Cu) sous les mêmes conditions expérimentales d'irradiation (0.5 J/cm <sup>2</sup> et 50 impulsions ). (a) images MEB (b) profil gaussien de l'intensité du faisceau laser, tel que déterminé par la mesure de la taille du faisceau. La direction du champ électrique est indiquée par la double flèche.....	<b>88</b>

## Liste des figures.

<b>Figure 4.2 :</b> Amplitude des LIPSS de différents matériaux avec une irradiation laser d'une fluence de $0.5 \text{ J/cm}^2$ et 50 impulsions.....	<b>89</b>
<b>Figure 4.3 :</b> Analyse de la morphologie des LIPSS sur les différents matériaux : Ru (a, e), W (b, f), Ni (c, g) et Cu (d, h) dans les mêmes conditions d'énergie et de nombre d'impulsion ( $0.5 \text{ J/cm}^2$ et 50 impulsions). Images AFM sur $15\mu\text{m} * 15\mu\text{m}$ (a, b, c, d) et lignes de profil à partir d'images AFM, en montrant la section transversale de la topographie des LIPSS (e, f, g, h).....	<b>90</b>
<b>Figure 4.4 :</b> Amplitude des LIPSS pour différents matériaux avec 50 impulsions en fonction de la fluence locale. La ligne pointillée indique la valeur de la fluence correspondant aux mesures AFM de la figure 4.3.....	<b>91</b>
<b>Figure 4.5 :</b> Evolution de la force de couplage electron-phonon en fonction de la temperature des electrons pour les differents métaux W (c), Ni (b) et Cu (a) [LZ08].....	<b>92</b>
<b>Figure 4.6 :</b> Schéma représentant les deux types de transitions électroniques, interbandes et intrabandes, mises en jeu lors de l'interaction d'un métal noble avec la lumière, Une transition interbande est une transition directe, alors qu'une transition intrabande est une transition indirecte [Bil06].....	<b>94</b>
<b>Figure 4.7 :</b> Calcul de la température électronique en fonction de la profondeur de diffusion des électrons ( $L_c$ ) pour les différents matériaux solides sur le seuil de fusion. La fenêtre correspondant à la plage prévue de la formation des LIPSS est représentée par la zone grise.....	<b>95</b>
<b>Figure 5.1 :</b> Différentes étapes du couplage laser-matière par deux impulsions pompe sonde avec $\tau_{e-ph}$ le temps de couplage electron-phonon.....	<b>100</b>
<b>Figure 5.2 :</b> Evolution des structures LIPSS en fonction des délais entre deux impulsions allant de 0fs à 100 ps dans les mêmes conditions expérimentales, sur une surface d'aluminium irradiée par 1000 paires impulsions de fluence de $0.2 \text{ J/cm}^2$ .....	<b>103</b>
<b>Figure 5.3 :</b> Evolution des LIPSS en fonction des délais entre deux impulsions allant de 0fs à 20 ps sur une surface de tungstène irradiée avec une fluence de $0.29 \text{ J/cm}^2$ et 80 paires d'impulsions.....	<b>105</b>
<b>Figure 5.4 :</b> Densité des LIPSS en fonction des délais entre deux impulsions allant de 0 fs à 300 ps sur une surface d'aluminium irradiée avec une fluence de $0.2 \text{ J/cm}^2$ et 1000 paires impulsions.....	<b>107</b>
<b>Figure 5.5 :</b> Densité des LIPSS en fonction des délais entre deux impulsions allant de 0fs à 20 ps sur une surface de tungstène irradiée avec une fluence de $0.29 \text{ J/cm}^2$ et 80 paires d'impulsions.....	<b>109</b>
<b>Figure 6.1 :</b> Schéma chronologique des différents processus de la formation des LIPSS.....	<b>113</b>

## Table des tables

---

<b>Tableau 2.1 :</b> Spécifications du système laser femtoseconde au LaHC à Saint Etienne.....	<b>39</b>
<b>Tableau 2.2 :</b> Spécifications du Système laser à Cottbus.....	<b>39</b>
<b>Tableau 2.3 :</b> Avantages et inconvénients des deux différentes techniques de mise en forme SLM/Michelson.....	<b>46</b>
<b>Tableau 2.4 :</b> Comparaison des valeurs calculées et expérimentales concernant les diamètres d'impact (d) et les distances lentille-échantillon (L) pour le plan image et le plan focal. Le plan image de diamètre 54.53 $\mu\text{m}$ doit se situer à 900 microns du plan focal (calcul). La méthode de recherche visuelle, grâce au microscope, nous a amené à nous placer à 800 $\mu\text{m}$ , soit un déplacement de 100 $\mu\text{m}$ .....	<b>55</b>
<b>Tableau 2.5 :</b> Récapitulatif présentant les différents avantages et inconvénients des différentes techniques utilisées (Microscope optique, MEB et AFM).....	<b>63</b>
<b>Tableau 4.1 :</b> Propriétés des matériaux étudiés (Ru, W, Ni et Cu). A(%) présente l'absorption des matériaux, $\delta$ est la profondeur de peau, $\gamma$ est la constante du couplage électron-phonon, K est la conductivité d'équilibre, $T_m$ la température de fusion et $C_i$ est la capacité calorifique des ions. Les différentes données sont extraites des références [LZ08, Pal85].....	<b>87</b>

## *Introduction générale*

## Introduction générale

L'utilisation des impulsions laser ultracourtes intenses apporte des développements expérimentaux très efficaces pour la recherche scientifique. Ces impulsions peuvent générer une excitation électronique importante à la surface des matériaux. L'utilisation de laser femtoseconde permet de minimiser les effets thermiques et mécaniques indésirables dans le matériau [KAE00]. Cette interaction a été largement étudiée au cours de ces dernières années dans différents domaines de la recherche fondamentale et dans le cadre applications industrielles. Elle continue à susciter un grand intérêt malgré les nombreuses avancées réalisées. De nombreux auteurs observent que l'interaction d'un faisceau laser femtoseconde avec une grande variété de matériaux est souvent accompagnée par la formation de nanostructures périodiques sur la surface de ces matériaux [BSS00, CHR02, YMK03, BH03, CHR03, YMK04, DM04, RK04, DKK04, YMK05, BMS05, WLN05, JCH05, TKM06]. Ces nanostructures sont appelées LIPSS (Laser Induced Periodic Surface Structures) ou « Ripples ». La direction de la polarisation du faisceau laser détermine l'orientation de ces structures dont la période est de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde du faisceau laser [GFS82, YPV83]. Ces structures ont fait l'objet d'une attention grandissante de la part des chercheurs depuis plus de trente années. Cet intérêt est d'autant plus grand que l'utilisation récente de lasers à impulsions ultra-brèves permet la réalisation de nouveaux types de micro/nano structures. Cela peut avoir des applications potentielles intéressantes dans le domaine des nanosciences et des technologies (photovoltaïque [SHT08], marquage avec un aspect visuel coloré [Aud07], imagerie...). Les propriétés caractéristiques des LIPSS ont été examinées en fonction des différents paramètres tels que la polarisation laser, la fluence laser, la longueur d'onde, et le nombre d'impulsions....

Les résultats obtenus ont montré que les LIPSS sont généralement produites dans un régime de multi-impulsions laser à faible fluence autour du seuil d'ablation. Les structures périodiques sont perpendiculaires au champ électrique laser « E », la période de la structure tend à être proportionnelle à la longueur d'onde laser  $\lambda$  utilisée [YMK03], l'alignement de ce type de structures est perpendiculaire au champ électrique du faisceau incident. Plusieurs groupes ont observé d'autres structures de périodes plus petites que la longueur d'onde laser  $\lambda$ , appelées « ultra fine LIPSS ». L'orientation de ces dernières est quant à elle parallèle au champ électrique du faisceau incident. Sur la base de ces résultats expérimentaux, plusieurs auteurs ont suggéré quelques mécanismes physiques qui pourraient entrer en jeu dans la

formation des LIPSS [CHR02, CHR03]. Une controverse existe toujours autour des phénomènes à l'origine de ces nanostructures. Par ailleurs, aucune approche physique globale n'a jamais été présentée. Cette approche est néanmoins indispensable si l'on veut comprendre mais surtout maîtriser la formation des LIPSS.

Notre approche a été essentiellement expérimentale afin de mettre en évidence quelques paramètres ou phénomènes physiques pouvant jouer un rôle majeur dans les processus de la formation de ces nanostructures.

Ce manuscrit est divisé en cinq chapitres :

Le premier chapitre est consacré à l'étude bibliographique autour des différents processus d'interaction laser-matière en mode femtoseconde et des phénomènes qui en résultent. On y présente les différents modèles associés à l'absorption de l'énergie ainsi que l'état de l'art sur les LIPSS et les paramètres influant sur leur formation. Enfin, quelques modèles théoriques préexistants sur la formation des LIPSS y sont exposés.

Le deuxième chapitre détaille la démarche expérimentale suivie et expose les différents dispositifs expérimentaux utilisés dans cette étude. Cela commence par une description détaillée des chaînes laser et de la mise en forme temporelle et spatiale de l'impulsion laser femtoseconde, enfin, on y aborde les différentes techniques de caractérisation des échantillons avant et après l'irradiation. Une illustration de la formation de LIPSS par ablation laser femtoseconde y est présentée.

Le troisième chapitre explore les résultats obtenus concernant l'importance des plasmons de surface sur le couplage laser/matière, et donc sur la formation des LIPSS. Dans ce cadre, des échantillons spécifiques ont pu être élaborés de façon à exciter les plasmons de surface puis à examiner leur influence sur la formation des LIPSS.

Le quatrième chapitre, présente une étude expérimentale de l'influence du couplage électron/phonon sur la formation des LIPSS. Nous avons examiné quatre matériaux avec différentes constantes de couplage électron/phonon sous une irradiation laser femtoseconde afin de déterminer l'évolution de l'amplitude des LIPSS en fonction de paramètre.

Enfin, le dernier chapitre du manuscrit est consacré à l'étude dynamique de la formation des LIPSS à l'aide d'une expérience pompe-sonde, celle-ci nous a permis d'examiner le rôle de la relaxation électron phonon sur la formation des LIPSS. Les travaux présentés dans ce manuscrit ont été réalisés dans le cadre d'une collaboration entre deux laboratoires :

- Le laboratoire Hubert Curien « LaHC » à Saint Etienne (France).
- Le laboratoire « LS/Chair Experimentalphysik II » à Cottbus (Allemagne).



## *Chapitre I*

### *« Formation des LIPSS : Un état de l'art »*

Résumé : ce chapitre présente une étude bibliographique concernant la formation des LIPSS. Une première partie concerne les mécanismes d'interaction laser femtoseconde-métal. Sont ensuite présentés les différents paramètres influents sur la formation de ces structures ainsi que les différents modèles développés dans la littérature.

## **1. Introduction**

Nous présentons dans ce premier chapitre qui est basé sur une étude bibliographique, une revue d'études expérimentales et théoriques permettant de mieux cerner les différents processus liés à la formation des LIPSS. Nous en dégagerons les processus physiques de l'interaction laser matière, et plus particulièrement l'interaction d'un laser femtoseconde avec des métaux. Nous commencerons par une description du processus de l'interaction laser matière et des différents phénomènes physiques qui en résultent. Nous présenterons par la suite les différents modèles associés à l'absorption de l'énergie du laser femtoseconde, et nous aborderons de manière générale les conditions de l'excitation des plasmons de surface (qui apparaît dans la littérature comme un phénomène initiant la formation des LIPSS). Ensuite, nous présenterons quelques modèles théoriques existants sur la formation des LIPSS, en proposant une analyse critique.

## **2. Interaction laser-matière en régime laser femtoseconde**

Depuis leur découverte, les impulsions laser ultra brèves et intenses constituent un processus de base pour de nombreuses applications dans différents domaines, tels que le micro usinage et le marquage de matériaux, la découpe, et le perçage, l'ablation, le dépôt de couches minces et le traitement des surfaces, ainsi que la chirurgie, et la restauration d'œuvres d'art [VD96, DRW02, HBW05]. L'interaction laser matière est un processus au cours duquel l'énergie du faisceau laser est absorbée par le matériau. Ce processus d'absorption dépend de la nature du matériau utilisé. Les métaux, les semi-conducteurs ou les diélectriques, répondent différemment à l'excitation d'un tel faisceau laser. Notre étude se concentre sur l'interaction avec les métaux. Nous détaillerons dans les paragraphes suivants les structures électroniques des métaux utilisés, ainsi que les différents processus d'interaction envisageables avec des impulsions laser femtoseconde.

### **2.1. Les différents processus d'interaction laser matière**

#### **2.1.1. Structure électronique des matériaux**

On peut considérer de manière synthétique qu'un solide est constitué d'un arrangement périodique d'ions plus ou moins ionisés (selon le nombre d'électrons de valence, qu'ils partagent avec les autres), et d'électrons de valence délocalisés.

Une représentation en « structure de bande » est plus explicite et permet de montrer que le solide possède des bandes d'énergies permises, séparées par des bandes interdites. On distingue en effet deux types de bandes : la bande de valence qui représente la dernière bande entièrement occupée, dans laquelle l'énergie des électrons se situe juste en dessous ou au même niveau que l'énergie de Fermi (l'énergie du plus haut niveau occupé à une température de zéro Kelvin) et une bande de conduction située au-dessus de la bande de valence, et qui peut être vide ou partiellement remplie. Entre les deux bandes, on trouve une bande interdite appelée le « Gap », cette dernière est vide d'électrons, et contient des états libres, sa largeur exprimée en eV dépend de la nature du matériau. Les électrons du solide se répartissent dans les niveaux d'énergie autorisés dans les bandes de

## Chapitre I.

valence et de conduction. Selon le remplissage des bandes à une température absolue ( $T=0K$ ) on peut distinguer les différences du comportement électrique entre les métaux, les semi-conducteurs et les diélectriques (figure 1.1) :

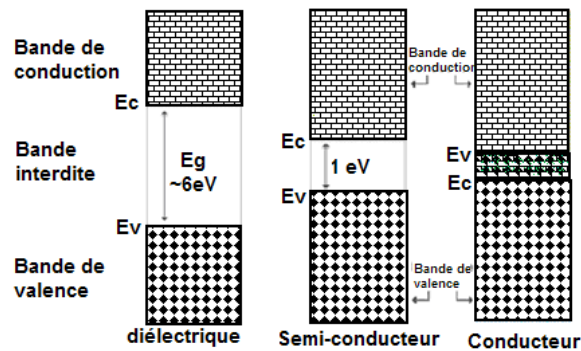


Figure 1.1. Structure de bande pour les différents matériaux : diélectrique, semi-conducteur et métaux, avec les différentes bandes d'énergie.

- Les métaux : Absence de bande interdite et la bande de conduction est partiellement remplie.
- Les semi-conducteurs : la bande interdite est plus étroite (de l'ordre de quelques eV) et la bande de conduction est vide.
- Les diélectriques : la bande interdite est large (de l'ordre de quelques dizaines d'eV) et la bande de conduction est vide.

De manière générale, l'interaction laser matière se fait par l'excitation d'électrons absorbant l'énergie apportée par des photons selon des mécanismes dépendant de la nature du matériau. Un matériau métallique est constitué d'un réseau d'ions entourés d'électrons plus ou moins liés. On peut distinguer les électrons de cœur et les électrons de valence. Les électrons de cœur sont fortement liés aux ions du réseau, leurs énergies de liaison sont très élevées (plusieurs centaines d'eV [Pet05]). Cela les rend peu sensibles à l'énergie générée par le faisceau laser excitant. Les électrons de valence, quant à eux, occupent généralement la couche électronique externe des atomes, ils sont délocalisés et partagés par plusieurs ions, leurs énergies de liaison moins fortes sont à la portée du faisceau laser excitant. Elles correspondent en effet aux énergies de photons dans la

## Chapitre I.

gamme visible et proche UV. Ces électrons déterminent la structure atomique du matériau.

Dans ce qui suit, nous analyserons les différents processus d'interaction du système laser femtoseconde avec les métaux (les métaux représentent les principaux matériaux utilisés dans notre partie expérimentale) et nous décrirons les différents modèles qui leurs sont associés.

### **2.1.2. Processus d'interaction d'un laser femtoseconde avec les métaux**

L'excitation d'un métal par des impulsions laser femtoseconde de haute intensité se caractérise par le fait que seuls les électrons libres sont concernés par l'interaction initiale. L'impulsion est courte, l'interaction est donc courte et le transfert d'énergie des électrons vers le système (le réseau cristallin) est plus lent que la durée de l'impulsion.

L'interaction laser ultra-courte dans les métaux, selon l'article de J. Hohlfed et al [HWG00], se fait sur trois intervalles de temps. Dans un premier temps, immédiatement après l'excitation laser, le système d'électrons est dans un état de non équilibre [FST92]. Ce déséquilibre d'électrons est favorisé par deux processus concurrents. Un premier processus est le mouvement balistique des électrons excités dans la partie la plus profonde du métal avec des vitesses proches de la vitesse de Fermi, c'est à dire environ  $10^6$  m/s [SBJ95]. Le deuxième processus est plus général, il concerne l'évolution de la température des électrons suite aux collisions entre les électrons excités et les électrons qui se trouvent autour du niveau de Fermi [ABP97]. Une fois que l'équilibre thermique entre les électrons chauds est atteint, un second intervalle de temps commence. Il se caractérise par une distribution de Fermi et une température des électrons initialement différente de celle du réseau. Ce bain d'électrons chauds est au début localisé à l'intérieur de la profondeur d'absorption optique. Ces électrons chauds sont diffusés dans la partie la plus profonde du métal avec une vitesse considérablement plus lente que celle du mouvement balistique. Cette diffusion est régie par le couplage électron-phonon qui refroidit le bain d'électrons. Ce refroidissement par couplage électron-phonon peut être décrit par le modèle à deux températures (comme nous le verrons dans le paragraphe suivant). Enfin, arrive un troisième intervalle de temps dans lequel les électrons et le

## Chapitre I.

réseau cristallin atteignent l'équilibre thermique par un échange thermique entre les deux systèmes, en raison de leurs différentes capacités thermiques.

L'énergie apportée par le système laser est celle des photons ( $h\nu$ ), elle est exprimée en eV. Cette interaction lumière/matière est considérée comme celle d'une onde plane monochromatique de pulsation  $\omega$ , incidente sur un milieu métallique caractérisé par sa constante diélectrique complexe :  $\epsilon_m(\omega) = \epsilon'_m(\omega) + i\epsilon''_m(\omega)$

Où,  $\epsilon'_m(\omega)$  est la partie réelle et  $\epsilon''_m(\omega)$  la partie imaginaire de la constante diélectrique.

La propagation de l'onde est alors régie par l'équation [PCF97] :

$$\Delta \vec{E} + \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon_m(\omega) \vec{E} = \vec{0} \quad (1.1)$$

Où  $\vec{E}$  est le champ électrique,  $\Delta$  est l'opérateur laplacien et  $c$  représente la vitesse de la lumière dans le vide, la solution de cette équation est alors de type :

$$\vec{E} = \vec{E}_0 \exp\left[i\omega\left(\frac{n}{c}z - t\right)\right] \text{ Avec } n^2 = (n_r + in_i)^2 = \epsilon_m(\omega) \quad (1.2)$$

Cette solution permet de définir l'indice complexe  $n$  du milieu. Le coefficient d'absorption, vaut alors :

$$\alpha = 2 \frac{\omega}{c} n_i \quad (1.3)$$

La réponse optique d'un métal peut être décrite par l'interaction entre le solide représenté par sa fonction diélectrique et la lumière représentée par une onde électromagnétique. Il y aurait donc deux contributions : celle qui concerne les transitions électroniques induites par l'absorption d'un photon entre deux bandes d'énergie, appelée la contribution interbande, et qui se situe généralement entre la bande de valence et la bande de conduction. Si l'énergie du photon incident est supérieure au seuil des transitions interbandes, alors un électron dans un état occupé de la bande de valence va passer dans un état vide de la bande de conduction. L'électron de la bande de valence va aller occuper un état vide de la bande de conduction sans qu'il n'y ait besoin d'apport extérieur. On qualifie donc cette transition interbande de directe.

L'autre contribution, concerne les transitions électroniques qui ont lieu à l'intérieur même de la bande de conduction, on l'appelle alors la contribution intrabande, une telle transition a lieu lorsque l'énergie du photon incident est inférieure au seuil des transitions

## Chapitre I.

interbandes. Un électron dans un état occupé de la bande de conduction va passer dans un état vide de la bande de conduction. L'électron de conduction aura besoin de l'apport extérieur d'une collision avec un phonon acoustique pour pouvoir aller occuper un état vide de la bande de conduction. C'est pourquoi, on qualifie cette transition intrabande d'indirecte. Cette dernière contribution est souvent décrite par le modèle de Drude, les électrons de conduction ayant un comportement d'électrons quasi-libres. Dans les paragraphes suivant, nous présenterons les mécanismes d'absorption d'énergie dans un métal, ainsi que le modèle à deux températures décrivant le processus de relaxation électron-phonon.

### 2.1.3. Epaisseur de peau

Selon le modèle de Drude, une onde électromagnétique pénétrant dans un milieu conducteur verra son intensité décroître exponentiellement. Pour une onde plane voyageant vers les  $x$  positifs et pénétrant normalement à la surface du métal, le terme de décroissance de l'intensité s'exprime par :

$$e^{-\frac{x}{\delta}}$$

Où  $\delta$  est appelée l'épaisseur de peau ou la profondeur de pénétration de champ dans un matériau [LP81] :

$$\delta = \frac{c}{\omega n_i} \quad (1.4)$$

Avec :

- $n_i$  : la partie imaginaire de l'indice de réfraction.
- $c$  : la vitesse de la lumière
- $\omega$  : la fréquence laser.

Les champs sont nuls à l'intérieur d'un conducteur métallique, au-delà d'une distance assimilée à l'épaisseur de peau  $\delta$ .

## **2.2. Mécanismes d'absorption d'énergie laser (fs) dans un métal**

L'absorption de l'énergie laser dans un métal se caractérise par le fait que seuls les électrons libres sont concernés par l'absorption initiale de l'énergie de l'impulsion femtoseconde. Nous l'avons déjà signalé dans les paragraphes précédents, cette absorption fait initialement intervenir les électrons libres du système, ce qui peut donner suite à une oscillation des électrons libres de la surface (plasmons), cette excitation est le sujet du paragraphe suivant dans lequel nous expliquerons le processus de l'excitation plasmonique dans les métaux. Nous décrirons également le processus du transfert d'énergie des électrons vers le réseau, à travers le modèle à deux températures.

### **2.2.1. Excitation plasmonique dans les métaux en mode femtoseconde**

#### **2.2.1.1. Plasmons de surface**

Un plasmon de surface est une onde résultant d'une oscillation collective des électrons libres situés à l'interface entre deux milieux différents, comme à l'interface entre un métal et un diélectrique. Cela se traduit par une chute de la réflectivité du métal due à un transfert d'énergie de faisceau incident aux électrons libres proches de l'interface métal/diélectrique lorsque les conditions de couplage sont remplies. Ces modes ont la propriété de concentrer l'énergie électromagnétique dans des régions dont la taille est de l'ordre de la longueur d'onde. Ceci ouvre des possibilités en nano-photonique [Ozb06, MK06, BDE03]. La résonance des plasmons dépend de nombreux paramètres tels que la nature des matériaux : les métaux nobles (Or, Argent, Nickel...) sont souvent utilisés en pratique pour leur comportement optique intéressant (faible fréquence de plasma) et la possibilité d'une excitation plasmonique dans le visible. L'excitation des plasmons par la lumière (voir le paragraphe suivant), conduit à une forte absorption et une exaltation du champ local électromagnétique. Les modes plasmons ont commencé à susciter de l'intérêt dès le début du 20e siècle (Zenneck, 1907; Mie, 1908; Sommerfeld, 1909). Puis en 1968 Otto [Ott68] montre que la réflexion totale atténuée peut provoquer



## Chapitre I.

une excitation de ces ondes de surface. Kretschmann et Raether [KRN68] arrivent aux mêmes résultats à partir d'une configuration différente de la méthode de la réflexion totale atténuée. Ces études ont permis de faire avancer les travaux dans le domaine des plasmons de surface notamment dans le cadre de la caractérisation des films minces et de l'étude des processus se déroulant sur des interfaces métalliques. Les progrès récents réalisés dans les différents champs d'application comme la structuration, la manipulation et l'observation à l'échelle nanométrique contribuent à revitaliser ce domaine.

### 2.2.1.2. Excitation des plasmons de surface

Pour bien comprendre l'excitation des plasmons de surface, il est possible de proposer une approche électromagnétique sur un modèle idéal d'interface entre deux milieux. Évidemment cette approche néglige quelques paramètres liés à certaines propriétés de surface, et dont la prise en compte nécessiterait des adaptations. L'expression du champ électromagnétique associé au plasmon est obtenue par la solution de l'équation de Maxwell (voir Annexe) sous la forme suivante :

$$H(x, y, t) = H_0 e^{ik_{ps}x} e^{ik_z z} e^{i\omega t} \quad (1.5)$$

Avec :

$\omega$  : la pulsation de l'onde.

$k_{ps}$  : le vecteur d'onde du plasmon de surface.

$$k_{ps} = k_0 \sqrt{\frac{\epsilon_d \epsilon_m(\omega)}{\epsilon_d + \epsilon_m(\omega)}} \quad (1.6)$$

Avec  $k_0$  est le vecteur d'onde dans le vide,  $\epsilon_d$  qui représente la permittivité absolue du diélectrique et  $\epsilon_m(\omega)$  la permittivité complexe du métal en fonction de  $\omega$  où  $\epsilon_m(\omega) = \epsilon'_m(\omega) + i\epsilon''_m(\omega)$  tel que  $\epsilon'_m(\omega)$  est la partie réelle de la permittivité du métal et  $\epsilon''_m(\omega)$  est la partie imaginaire. Par conséquent,  $k_{ps}$  est de forme complexe

## Chapitre I.

$k_{ps}(\omega) = k'_{ps}(\omega) + k''_{ps}(\omega)$ . Dans le cas des métaux, comme l'or ou l'argent, nous avons  $|\epsilon'_m(\omega)| > 1$  et  $|\epsilon'_m(\omega)| \gg |\epsilon''_m(\omega)|$  donc le vecteur d'onde propagative du plasmon peut être simplifié sous la forme [Pou07] :

$$k'_{ps} = k_0 \sqrt{\frac{\epsilon_d \epsilon'_m(\omega)}{\epsilon_d + \epsilon'_m(\omega)}} \quad (1.7)$$

Avec ces données, la composante propagative du vecteur d'onde du plasmon  $k'_{ps}$  est toujours plus grande que celle du vecteur d'onde  $k_0$  qui est la valeur maximale du vecteur d'onde de l'onde incidente. Ainsi tout couplage entre la lumière incidente et le plasmon de surface est impossible. Dans l'hypothèse où  $k_0$  se propage dans l'air, l'égalité des vecteurs d'onde n'est donc assurée que si l'on fait propager l'onde incidente dans un milieu d'indice plus élevé que 1, (par exemple un prisme Figure 1.2) ou en utilisant un réseau de diffraction (Figure 1.3). Cette configuration est celle que nous avons retenue pour exciter ces plasmons de surface, car c'est la seule qui permet d'observer une structuration de surface, la présence de prisme rendant cela impossible. Comme nous expliquons dans l'Annexe 1, l'excitation des plasmons n'est possible que pour une polarisation TM, ce ne sera pas possible d'exciter des plasmons par une polarisation TE. La polarisation du champ incident est donc un élément important, tout comme l'effet du milieu dans lequel se propage l'onde incidente.

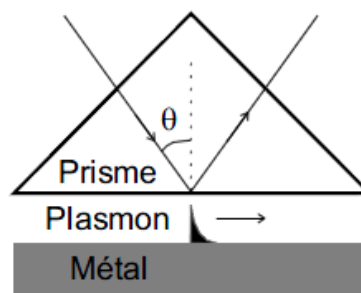


Figure 1.2. Configuration pour l'excitation de plasmons de surface par un prisme [Ott68].

## Chapitre I.

Pour assurer une excitation des plasmons de surface, nous pouvons utiliser une autre configuration utilisant un réseau de couplage présentée dans la figure 1.3. Les conditions de couplage s'expriment par la condition d'accord de phase :

$$k^m = k_i \sin \theta + m \frac{2\pi}{a} \quad (1.8)$$

Où  $k^m$  est la composante du vecteur d'onde parallèle à l'interface de l'onde diffractée d'ordre  $m$ , qui pour un réseau de période  $a$  éclairé par une onde d'incidence  $k_i$  sous un angle d'incidence  $\theta$ .

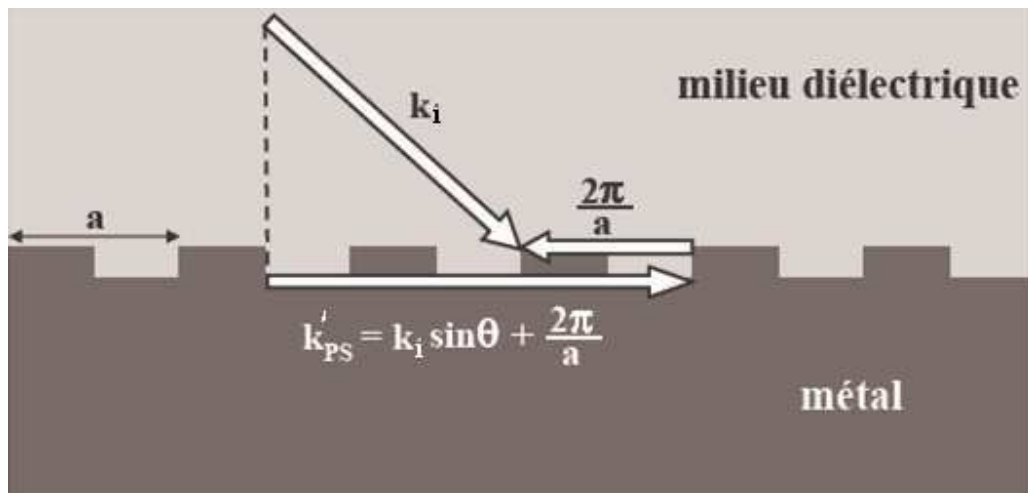


Figure 1.3. Schéma de principe de l'excitation des plasmons de surface à la surface d'un réseau de diffraction [Bon06].

### 2.2.2. Relaxation électron-phonon : Modèle à deux températures

Après avoir vu dans les paragraphes précédents les différents mécanismes d'absorption (le transfert d'énergie du laser aux électrons), nous aborderons dans cette partie le processus de relaxation de l'énergie dans les métaux, par relaxation électron-phonon. Lors de l'absorption de l'énergie d'un système laser par les électrons libres du métal, ces derniers transfèrent leur énergie thermique au reste du système via une interaction électron-phonon. Lorsqu'on parle de l'interaction électron phonon, il ne s'agit

## Chapitre I.

nullement d'une collision des électrons avec les ions du réseau, l'interaction n'est donc pas collisionnelle mais coulombienne. Les vibrations du réseau impliquent des écarts à ces positions d'équilibre, et donc une modification de l'interaction avec les électrons. [Pet05]. Ces positions d'équilibre changent sous l'effet des vibrations du réseau ce qui modifie également l'interaction avec les électrons.

Cette interaction continue jusqu'à atteindre l'équilibre thermique entre deux systèmes différents au départ : un système d'électrons chauds et un système d'ions froids (correspondant au réseau). L'équilibre thermique a lieu au bout de quelques picosecondes. Ce temps varie d'un métal à l'autre. On modélise habituellement ce transfert d'énergie par le modèle à deux températures.

Dans le cas des impulsions ultra-courtes, le modèle à deux températures (en Anglais « two temperatures model (TTM) ») a été élaboré par Anisimov en 1974 [AKP74]. Ce modèle décrit la différence et la variation de la température entre les deux systèmes (celui des électrons et celui du réseau), il comporte des équations de diffusion, couplées à un terme proportionnel à la différence de température entre les deux systèmes (électron-réseau), multiplié par la force de l'interaction électron-phonon. Il est donc possible de réduire le couplage électron-phonon à un terme de couplage linéaire sous la forme  $g(T_e - T_i)$ , les équations suivantes expriment la variation des températures dans les deux systèmes [NMJ97] :

$$\begin{aligned} C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial z} \left( k_e \frac{\partial T_e}{\partial z} \right) - g(T_e - T_i) + S(z, t) \\ C_i \frac{\partial T_i}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial z} \left( k_i \frac{\partial T_i}{\partial z} \right) + g(T_e - T_i) \end{aligned} \quad (1.9)$$

$$S(z, t) = I(t)A\alpha \exp(-\alpha z)$$

Tels que  $C_e$ ,  $K_e$  et  $C_i$ ,  $K_i$  sont respectivement les capacités et les conductivités thermiques des électrons et du réseau,  $S(z,t)$  est le terme de chauffage de la source laser, caractérisée par une intensité laser  $I(t)$ .  $A$  est l'absorptivité de la surface et  $\alpha$  le coefficient d'absorption du matériau. Comme la diffusion thermique électronique est beaucoup plus rapide, on peut négliger dans l'équation (2) la conductivité thermique du réseau.

## Chapitre I.

Le modèle à deux températures peut par exemple être appliqué avec succès dans la prédiction de la fluence seuil de la fusion. Nolte et al [NMJ97] ont proposé une solution analytique pour les équations (TTM) en divisant le processus d'interaction laser-matière en deux étapes distinctes : une excitation du matériau pendant l'irradiation laser et une relaxation à la fin d'une durée de l'impulsion laser [NMJ97]. Au cours de la première étape, ils ont considéré que l'évolution temporelle de la distribution de la température électronique était liée au profil temporel du laser. Dans la deuxième étape, la distribution de la température du réseau est supposée être linéairement liée à la distribution de la température électronique.

La figure 1.4 ci-dessous représente une illustration de l'évolution temporelle de la température des électrons et du réseau, calculée à partir d'un temps  $t = 0$ , dans le cas d'une cible de cuivre pour une intensité laser de  $I_0 = 5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ . Ces courbes dépendent fortement de la conductivité électronique et de la force de la constante de couplage électrons phonon  $g$ . Plus la valeur de la constante de couplage  $g$  est grande, plus vite est atteint l'équilibre dynamique entre le réseau et le système électronique. Par exemple, dans la Fig. 1.5, on montre une comparaison entre l'évolution des températures des électrons et du réseau, calculée dans les mêmes conditions que la figure 1.4, pour les cibles de nickel et d'or. Nous remarquons que, dans le Nickel, le temps du transfert d'énergie des électrons vers le réseau est plus rapide que dans l'or, en raison des différentes valeurs de la constante du couplage e-ph dans les deux matériaux. D'après [LZ08] la constante de couplage  $g$  pour le Ni ( $2 \cdot 10^{17} \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ) est plus grande que celle de l'Au ( $0.5 \cdot 10^{17} \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ).

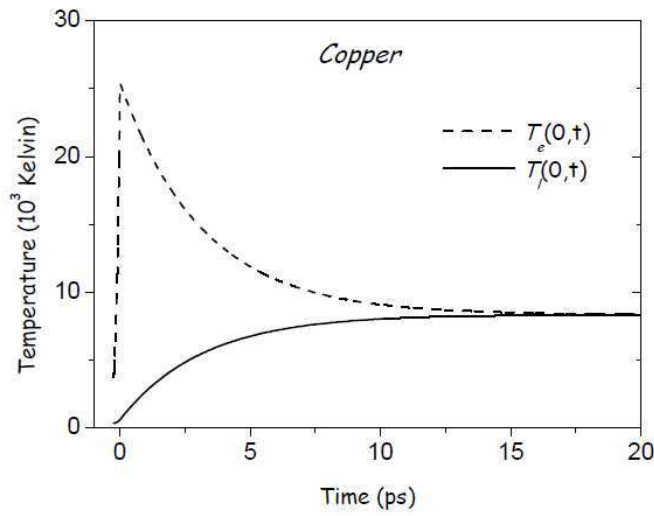


Figure 1.4. Evolution temporelle de la température des électrons ( $T_e$ ) et de réseau ( $T_i$ ), après une irradiation laser femtoseconde de durée d'impulsion de 120 fs centrée à 800 nm avec une intensité de  $I_0=5 \times 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> sur une cible de cuivre [WHG99].

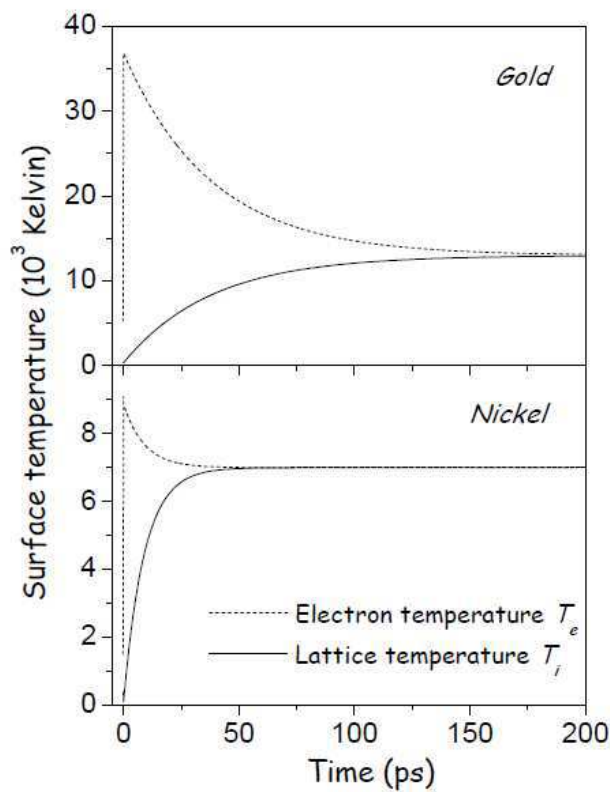


Figure 1.5. Comparaison de l'évolution temporelle des températures des électrons et du réseau entre le Nickel et l'Or dans les mêmes conditions que celles de utilisées dans la figure 1.4 [WHG99].

### **3. Formation des LIPSS**

#### **3.1. Phénoménologie**

La formation des LIPSS résultant d'une interaction laser-matière a été observée pour la première fois par Birnbaum en 1965 [Bir65], suite à l'interaction d'un laser à Ruby avec un semi-conducteur. Ce phénomène de structuration périodique de la surface d'un solide n'est pas limité au seul cas de l'interaction d'un faisceau laser avec un matériau, mais il a été observé de façon générale lors de l'interaction particule-matière (comme lors d'un bombardement ionique) [Ise77, OS79]. Les structures périodiques de surface induites par laser ont été observées sur divers matériaux comme les métaux [Ise77, KS76], les semi-conducteurs [SAP94, GS97], les isolants [KK99, TBL95], les polymères [BL93, CMB01], et les matériaux composites [WH85, WES98]. Ce phénomène ne se limite pas seulement aux matériaux massifs, mais il concerne également les films minces [TBL95, WES98]. Ces structures de surface sont également observées lors d'irradiations sur une large gamme de longueurs d'onde de l'ultraviolet à l'infrarouge lointain, et avec différentes durées d'impulsions. En première approche les caractéristiques de ces structures périodiques dépendent des paramètres du faisceau laser et des propriétés de matériaux. Beaucoup d'études ont été menées dans le but de déterminer ces différents paramètres et mécanismes qui entrent en jeu lors de l'irradiation laser. Dans les paragraphes suivants nous aborderons certains paramètres qui influencent la formation des LIPSS.

##### **3.1.1 Orientation des LIPSS**

Dans toutes les expériences de formation des LIPSS, il apparaît clairement que la polarisation du laser est un paramètre influant sur la forme et l'orientation des LIPSS. Ainsi, les structures LIPSS présentent deux structures d'orientations différentes, une perpendiculaire, et l'autre parallèle au champ électrique de la polarisation linéaire du faisceau laser [RHM09], ces deux structures se superposent perpendiculairement comme cela est illustré sur la figure suivante.

## Chapitre I.

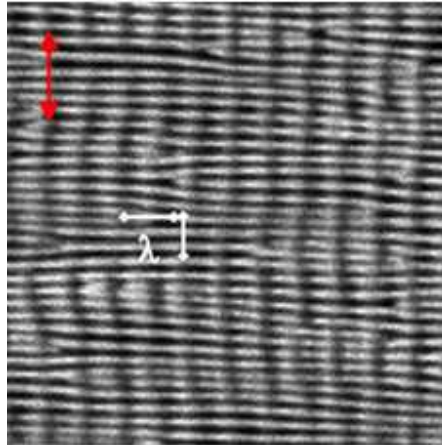


Figure. 1.6. Observation de deux structures LIPSS présentant une orientation différente par rapport à la longueur d'onde (double flèche rouge) après d'une irradiation laser par  $10^3$  impulsions femtosecondes et  $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> sur une cible de BaF<sub>2</sub> [Rei06].

Les résultats montrent globalement que la période des LIPSS est voisine de la longueur d'onde du faisceau laser incident (LSFL : low spatial frequency LIPSS). Les structures que nous appelons « fine LIPSS » ont une orientation perpendiculaire à la polarisation du faisceau laser. Récemment, de nouvelles expériences par irradiation laser femtoseconde ont montré la formation de LIPSS de période plus petite que la longueur d'onde lors d'une irradiation par un laser femtoseconde (HSFL : high spatial frequency LIPSS), nous appellerons ces structures « extra-fine LIPSS », leur orientation est parallèle à la polarisation du faisceau laser.

Varlamova et al [VCR07], ont procédé à d'autres expériences afin de déterminer de manière claire l'influence du degré de polarisation sur la forme et l'orientation des LIPSS. On constate alors que l'utilisation d'une polarisation circulaire sous une incidence normale est suivie de la formation de nanostructures circulaires de diamètre d'environ 100 nm ou moins. Les images de la figure .1.7 montrent une forte influence de la direction du champ électrique laser sur l'orientation des LIPSS. Pour une polarisation linéaire (Figure 1.7 (a, j)), l'orientation des LIPSS est perpendiculaire au champ électrique. Plus la polarisation porte un changement de direction vers une polarisation circulaire, plus l'orientation des structures dépend de la grande composante elliptique du champ électrique du faisceau incident (la polarisation elliptique porte deux composantes différentes du champ électrique  $E_x$  et  $E_y$ ) comme illustré sur les images (b, c, d, f, g et h)



## Chapitre I.

de la figure 1.7. Avec une polarisation circulaire (les deux composantes du champ électrique  $E_x$  et  $E_y$  sont de même amplitude) la forme des LIPSS est sphérique avec un diamètre d'environ 100 nm (voir l'image (e) de la figure 2.7). Ce résultat expérimental montre une forte dépendance de la forme et l'orientation des LIPSS par rapport au champ électrique et à la polarisation du faisceau laser.

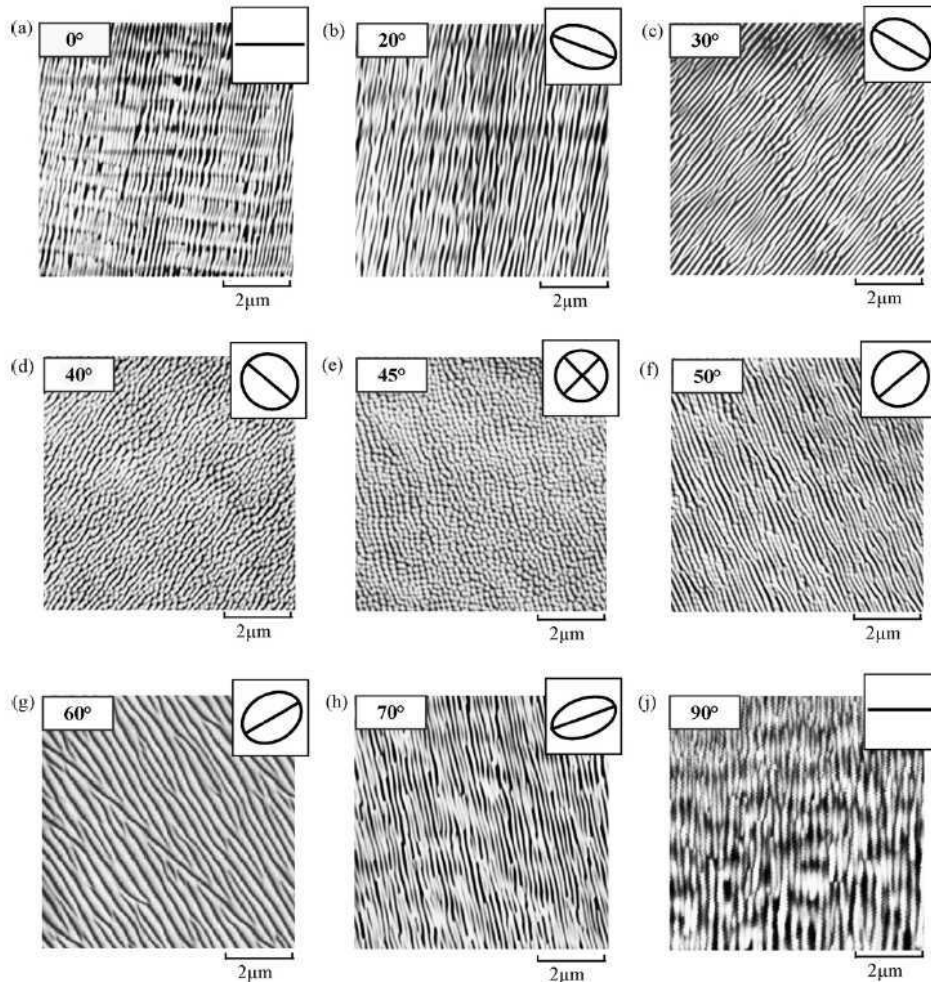


Figure 1.7. Images MEB montrant l'orientation des LIPSS en fonction de la polarisation de faisceau laser. Une irradiation d'une surface de  $\text{CaF}_2$  avec les différentes polarisations de faisceau laser, les images : (a), (b), (c), (d) et (e) produites par l'accumulation de  $3 \cdot 10^3$  impulsions et  $8.3 \text{ W/cm} \cdot 10^{12}$ . Images (g) et (f) ont été produits par l'accumulation de  $5 \cdot 10^3$  impulsions à la même énergie de  $8.3 \text{ W/cm} \cdot 10^{12}$  [VCR07].

### **3.1.2. Influence des paramètres expérimentaux (dose d'énergie et nombre d'impulsions) sur la formation des LIPSS**

L'accumulation de la dose d'énergie varie en fonction du nombre d'impulsion et de l'énergie par impulsion. Nous considérons dans un premier temps la formation ou non de LIPSS en fonction de la fluence laser « F » et du nombre d'impulsion « N ». Il apparaît clairement que la présence de LIPSS est soumise à un seuil dépendant de N et F, ceci se vérifiant aussi bien pour les métaux et les semi-conducteurs [ZMW07, GGS07] que pour les diélectriques [CHR03]. Il est également à remarquer que les différents articles traitant du sujet mentionnent que la formation des LIPSS n'est atteinte qu'au bout de plusieurs séries d'impulsions incidentes [JGL02]. Néanmoins les collègues du Laboratoire Hubert Curien, ont récemment démontré l'observation des LIPSS avec une seule impulsion laser (Guillermin et al [GGS07]).

Concernant l'influence de la dose d'énergie déposée dans les différents matériaux, les études menées et rapportées dans différents articles montrent l'existence d'une corrélation entre la période des LIPSS et la dose d'énergie déposée (la fluence F et le nombre d'impulsions N). La Figure 1.8 extraite de la référence [Gui09] montre le lien entre la dose d'énergie et les différents types de LIPSS. Dans le cadre de cette expérience on peut distinguer quatre types de LIPSS [GGS07] :

Type 1 : LIPSS avec des périodes autour de la longueur d'onde, d'orientation perpendiculaire à la polarisation du champ incident.

Type 2 : LIPSS avec des périodes supérieures à la longueur d'onde (1-2  $\mu\text{m}$ ) et d'orientation parallèle à la polarisation du champ incident.

Type 3 : LIPSS sous forme de morphologies de type « worm-like » avec des périodes d'une longueur typique d'environ 2  $\mu\text{m}$ .

Type 4 : LIPSS orientées dans la direction du perçage. Elles sont plus prononcées lorsque la polarisation du laser est parallèle à la surface de la paroi.

La dose d'énergie s'avère donc être un paramètre influent dans la formation des LIPSS.

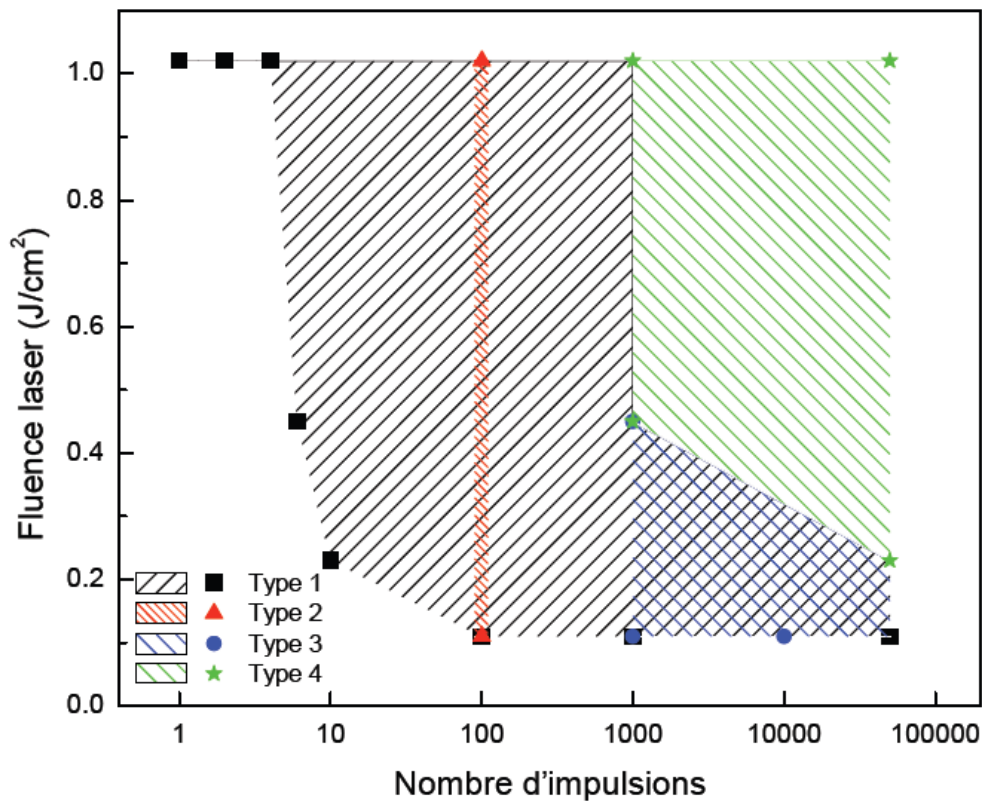


Figure 1.8. Différents types de LIPSS à la surface du cuivre en fonction de la fluence laser et du nombre d'impulsions d'après [Gui09].

## 3.2. Les différents modèles

### 3.2.1. Vue générale

Les premières explications proposées sur la formation des LIPSS, lors de leur découverte en 1965 par Birnbaum, sont basées sur l'interférence entre le faisceau laser incident et le faisceau se propageant à la surface du matériau et qui est réfléchi par les défauts superficiels macroscopiques ou par différentes particules préexistantes. Cette interprétation a été suggérée par Emmony en 1973 [EHW73] et développée par Temple et al [TS81], Zhou et al [ZFS82]. L'explication proposée par Sipe et al [SYP83] sur la formation des LIPSS concorde parfaitement avec les observations obtenues lors de

## Chapitre I.

l'irradiation des matériaux par des impulsions longues. Dans la plupart des cas, les structures obtenues ressemblent à celles observées avec une orientation perpendiculaire à la polarisation et une période égale à la longueur d'onde. Cependant, la complexité du phénomène est telle que certains points restent à éclairer malgré les avancées majeures effectuées dans ce domaine. En effet, même si depuis leur découverte les chercheurs ont réussi à expliquer plus ou moins l'origine de ces structures, il n'en demeure pas moins que certains aspects du phénomène restent flous, en particulier lors de l'utilisation d'impulsions femtoseconde. A titre d'exemple, des expériences plus récentes utilisant ces impulsions ont fait apparaître quelques différences avec la théorie développée par Sipe et al [SYP83]. La longueur d'onde est plus longue que les périodes observées induites par une irradiation par des impulsions femtoseconde, on a également observé des structures d'orientation parallèle à la polarisation. Ainsi, l'origine de ces structures même fait encore débat, car aucune explication proposée ne fait l'unanimité. Dans les sections suivantes, nous présenterons quelques modèles concernant la formation des LIPSS.

### **3.2.2. Modèle classique**

La théorie de J. Sipe [SYP83] est la première qui prenne en compte les effets des interactions des ondes électromagnétiques avec la rugosité des surfaces pour expliquer la formation des LIPSS. De cette interaction, s'ensuit un dépôt non homogène d'énergie dans le matériau. Il propose un modèle basé sur la résolution des équations de Maxwell pour une onde incidente sur une surface possédant une rugosité de taille caractéristique petite devant la longueur d'onde. Il propose de séparer le solide en deux parties : une couche mince contenant la rugosité et un bloc solide (figure (1.9)). Il part de l'hypothèse que la taille de cette couche mince est petite devant la longueur d'onde incidente. Cette hypothèse est relativement cohérente pour des matériaux polis comme dans le cas de silicium et d'une longueur d'onde laser de 800nm.

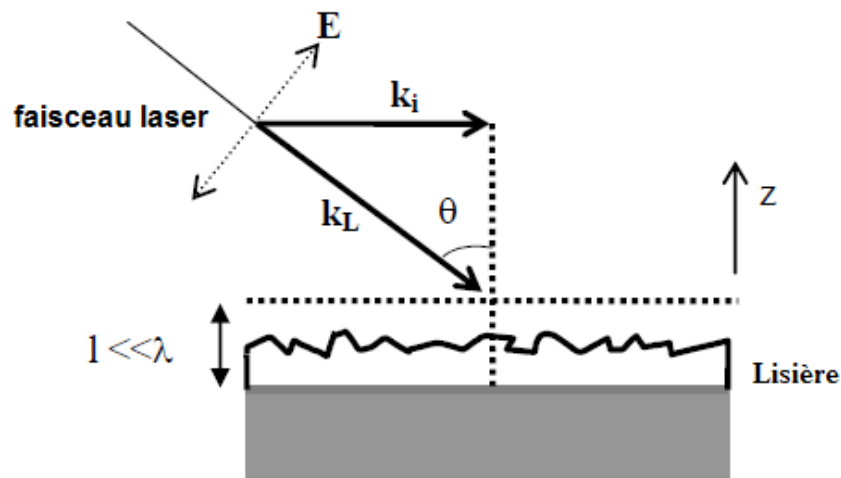


Figure 1.9. Géométrie du faisceau laser incident sur une surface rugueuse [Cos06].

A la fin du calcul de la résolution des équations de Maxwell [SYP83], il obtient l'intensité du champ en  $z=0$ , celle-ci possède une partie dépendante de  $k$ , entraînant une modulation spatiale du champ électrique et donc de l'intensité sur la surface de l'échantillon  $I(k)$ . Ce terme vaut :

$$I(k) = \eta(k) \times b(k) \quad (1.10)$$

Avec :  $\eta(k)$  la fonction correspond à l'efficacité de dépôt d'énergie juste sous la surface dans l'espace de Fourier. Le deuxième facteur  $b(k)$  représente une mesure d'amplitude de la rugosité superficielle en  $k$  [SYP83].

Cependant, dans le calcul de Sipe, on se place dans le cadre de la première impulsion. Il considère alors que la rugosité de la surface est aléatoire. La fonction  $b(k)$  peut dans ce cas être représentée par une fonction variant lentement. Le facteur  $\eta(k)$  correspond quand à lui à l'efficacité de dépôt de l'énergie juste en dessous de la surface. Cette distribution non homogène du champ mène à la formation progressive des LIPSS. Le facteur d'efficacité  $\eta(k)$  correspond à la transformée de Fourier de la surface résultante de l'irradiation. Cela permet une comparaison directe entre les prédictions théoriques et les résultats expérimentaux. Les prédictions s'accordent avec les observations [YPV83], du

## Chapitre I.

moins en ce qui concerne l'irradiation par des lasers continus ou des lasers impulsifs nanosecondes. Bonse et al [BRK11], ont utilisé ce même modèle en combinaison avec le modèle de Drude. Les prédictions théoriques s'accordent avec les résultats expérimentaux (figure 1.10).

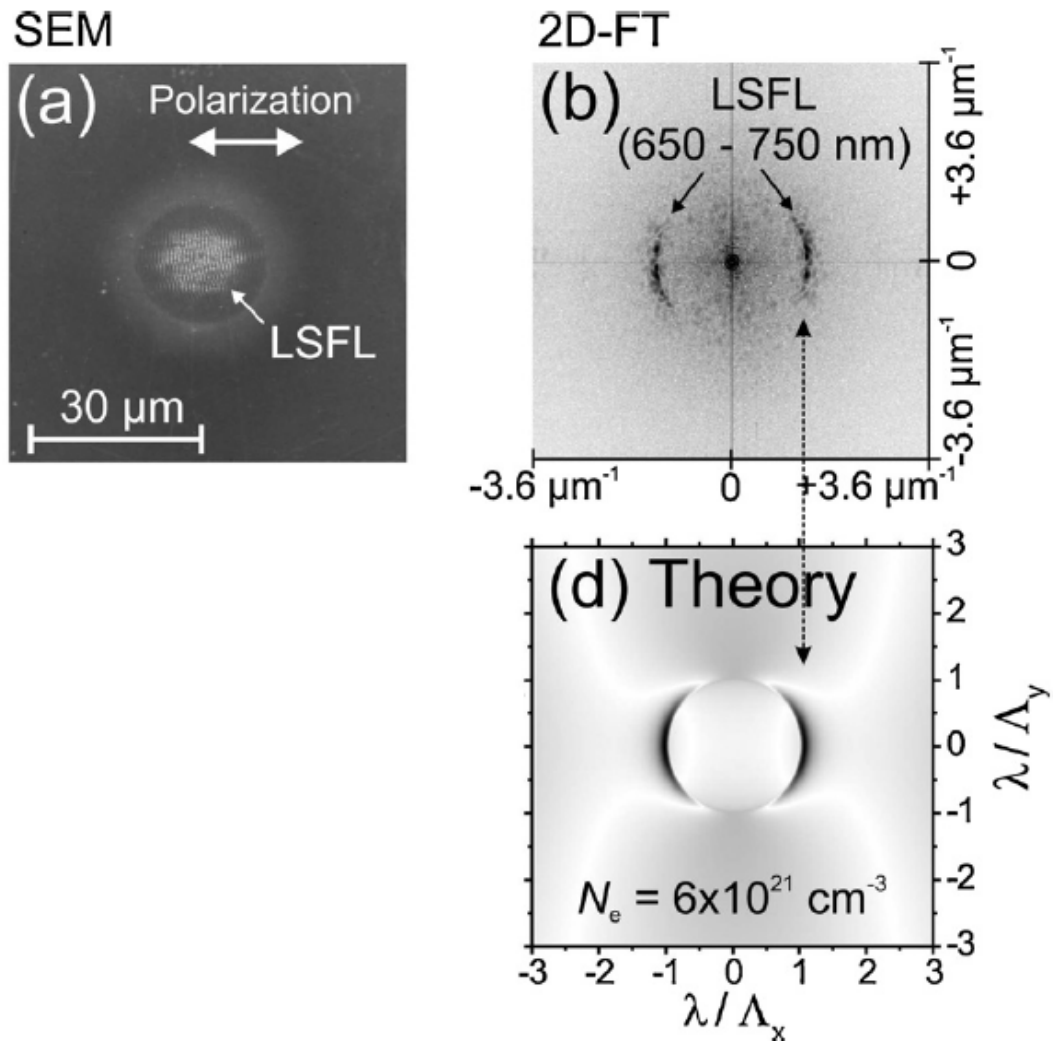


Figure 1.10. Comparaison entre les résultats expérimentaux et les calculs théoriques : (a) irradiation d'une surface de silicium avec 5 impulsions et une fluence de 0.42 J/cm<sup>2</sup>. (b) 2D-FT de l'image (a) montre des LIPSS (LSFL) avec des périodes allant de 650 à 750 nm, (c) efficacité de dépôt de l'énergie  $\eta(k)$  dans l'espace de Fourier selon le modèle de Sipe-drude pour le silicium [BRK11].

## Chapitre I.

Le modèle (Sipe) suggère que la périodicité des LIPSS est proportionnelle à la longueur d'onde incidente et l'angle d'incidence sous la forme suivante :

$$\Lambda = \frac{\lambda}{n_0(1 \pm \sin \theta)}, \quad (1.11)$$

Où  $\Lambda$  est la période des LIPSS,  $\lambda$  est la longueur d'onde incidente,  $n_0$  est l'indice du milieu dans lequel se propage l'onde de surface et  $\theta$  l'angle d'incidence (entre le faisceau incident et la normale à la surface), Le signe « - » correspond à l'onde diffusée dans le même sens que l'onde incidente et le signe « + » à l'onde diffusée en sens inverse et l'orientation des LIPSS est perpendiculaire au champ incident. La limitation du modèle proposé est que certains résultats restent difficiles à expliquer dans le cadre de ce modèle. C'est le cas des structures dont la taille est plus petite que la longueur d'onde du laser, en particulier avec des lasers femtosecondes. Il s'avère alors nécessaire de développer des approches dynamiques permettant de prendre en compte les aspects temporels liés aux impulsions ultra-brèves.

### 3.2.3. Approches dynamiques

#### 3.2.3.1. Modifications transitoires des propriétés optiques

La périodicité des LIPSS a fait l'objet de beaucoup d'études expérimentales et théoriques, les résultats montrent globalement que la période des LIPSS est voisine de la longueur d'onde du faisceau laser incident. Récemment, de nouvelles expériences ont montré la formation de LIPSS à des périodes plus petites que la longueur d'onde lors d'une irradiation par un laser femtoseconde. Plusieurs auteurs continuent d'élaborer des modèles théoriques qui tiendraient compte de tous les aspects expérimentaux associés au phénomène des LIPSS, on peut citer à titre d'exemple le groupe Bonse et al [DRD09] qui a proposé une approche théorique basée sur la modification transitoire des propriétés optiques, combinant deux modèles : le modèle classique de Sipe traité précédemment et le modèle de Drude décrivant les propriétés optiques d'excitation d'un solide par le laser. En effet, le modèle de Sipe-Drude [DRD09] stipule d'une part que la formation des LSFL est due à une forte absorption en raison d'une interférence entre le faisceau incident et les

## Chapitre I.

ondes électromagnétiques dispersées à la surface du matériau. D'autre part, il apporte une explication concernant les périodes observées et qui sont plus petites que la longueur d'onde du faisceau laser par une modification transitoire des propriétés optiques du matériau [BBK02, DKK04, BMS05, CKR04, CH07, GGS07, WG07, VMG07]. Ce modèle permet donc de prendre en compte la nature extrêmement intense de l'interaction avec l'impulsion ultra-brève, il consiste à appliquer le modèle de Sipe à un matériau dont la constante diélectrique a été modifiée afin de prendre en compte l'effet du gaz électronique excité durant l'impulsion. Cette approche considère que les impulsions femtoseconde intenses peuvent induire un changement de l'indice de réfraction en raison de la génération transitoire des électrons quasi-libres dans la bande de conduction du solide [SL00]. Néanmoins, ce modèle présente quelques limitations car certains résultats restent difficiles à expliquer, c'est le cas par exemple des structures parallèles à la polarisation avec des périodes allant de 1.1 à 2  $\mu\text{m}$  (que l'on appelle dans la littérature « onde de capillarité »), observées lors d'une irradiation à plus haute fluence. Ces structures résultent certainement de l'interaction entre deux ondes de surface se propageant avec un certain angle. Cependant, la question reste ouverte en ce qui concerne les phénomènes menant à la création de ces deux ondes.

### **3.2.3.2. Auto-organisation**

La complexité de la formation des LIPSS dans le régime femtoseconde a conduit certains chercheurs à proposer d'autres explications, dont l'une a été avancée par J. Reif et al [CHR02, CHR03, Rei06]. Ce modèle appelé « auto-organisation de la surface », semble être adapté à l'interaction laser femtoseconde avec les semi-conducteurs et les diélectriques. Il se fonde sur l'évolution thermodynamique de la surface suite à une perturbation de la cible produisant une instabilité de surface. L'idée générale de cette modélisation est l'hypothèse selon laquelle l'excitation et l'ablation peuvent induire une instabilité de la cible. Il est proposé que les structures périodiques observées en régime femtoseconde soient basées sur la compétition entre un processus d'érosion créateur de surface et une diffusion des atomes en fonction de la tension superficielle tendant à limiter les interfaces [YBP06, CCB06]. Ces structures sont similaires à celles qu'on



## Chapitre I.

observe lors de l'interaction d'un faisceau d'ions avec la surface d'un solide [VCR06, YBP06], mais les mécanismes physiques du transfert d'énergie à partir d'un faisceau laser vers la cible sont sensiblement différents. Dans le cas de la formation des LIPSS induite par un faisceau d'ions, l'instabilité de la cible est provoquée par un transfert direct de l'énergie cinétique du faisceau d'ions au réseau à la suite de collisions entre les atomes de la cible [BH88]. Dans le cas d'une impulsion laser ultra-courte, le transfert d'énergie du faisceau incident au matériau se fait via une excitation électronique du système (multi-photonique). Cette excitation suivie d'une émission d'électrons, il se produit alors une explosion colombienne qui se manifeste par une émission rapide et lente d'ions en raison de la charge positive. Les défauts localisés créés par l'impulsion, suite à cette perturbation des liaisons interatomiques s'accumulent à la surface à chaque impulsion ultérieure, il se produit une instabilité de surface. Ensuite une relaxation thermique se produit par un effet de conductivité thermique ramenant à une réorganisation et la formation des LIPSS. La figure 1.11 présente la chronologie des différents processus dans le cas d'une interaction laser-diélectrique.

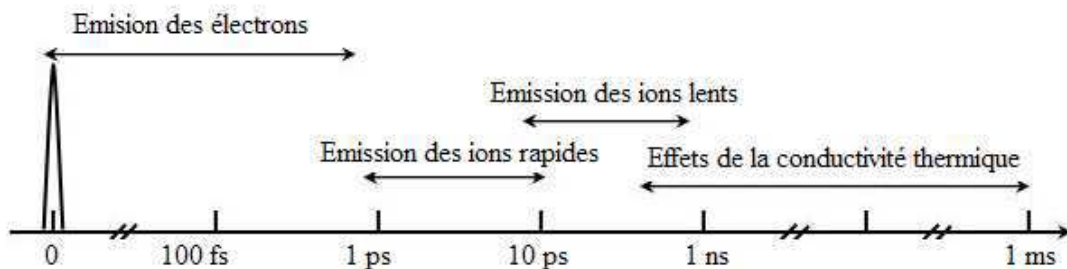


Figure 1.11. Chronologie des différents processus dans le cas d'une interaction laser-diélectrique[Var11].

### **3.2.3.3. Rôle des plasmons de surface sur la formation des « LIPSS »**

Comme nous l'avons mentionné dans la section précédente 1.2.1.1, un plasmon de surface est une onde résultante d'une oscillation collective de la densité de charge à l'interface entre deux milieux différents. L'excitation des plasmons de surface nécessite certaines conditions permettant leur couplage avec l'onde incidente, ces conditions ont été discutées dans la section précédente 1.2.1.2. Les LIPSS ont une période spatiale proche de la longueur d'onde d'irradiation et il est généralement admis qu'elles sont formées suite aux interférences optiques entre le rayonnement laser incident et l'onde de surface électromagnétique créée lors de l'irradiation [BBK02, SYP83, BMS05]. Lors d'une excitation des plasmons de surface par une onde incidente, elle produit un dépôt d'énergie modulée à la surface du matériau. Dans ce cadre, nous avons réalisé une étude expérimentale permettant de déterminer l'influence de l'excitation des plasmons de surface sur la formation des LIPSS, l'hypothèse qui a été avancée et que nous avons démontrée par la suite stipule que la génération des structures LIPSS sur la surface d'un métal peut être attribuée aux plasmons de surface induits sous une excitation laser femtoseconde [HZC09, BRK09]. En d'autres termes, cette hypothèse consiste à dire que l'étape initiale de la formation des LIPSS nécessite un couplage électromagnétique entre l'onde incidente et l'onde du plasmon de surface [GCP11], cette approche sera présentée dans le chapitre 3. Dans ce cadre nous allons présenter dans la section suivante le processus du dépôt périodique de l'énergie dans un matériau.

### **3.2.3.4. Dépôt périodique de l'énergie**

Le dépôt périodique de l'énergie sur la surface du matériau nécessite une excitation d'une onde plasmonique à la surface du matériau par une onde incidente, cette excitation peut se faire soit par l'intermédiaire d'un réseau de couplage ou par un changement périodique des propriétés optiques (par exemple un réseau de diffraction).

### **a) Réseau de couplage pour l'impulsion suivante**

L'excitation du plasmon de surface nécessite certaines conditions permettant un couplage entre l'onde incidente et l'onde de surface, ces conditions sont présentées dans la section précédente 1.2.1.2. La fabrication d'un réseau à la surface d'un métal permet un changement des propriétés optiques à l'interface entre deux milieux métal/diélectrique pour assurer un couplage fort entre l'onde incidente et l'onde de surface. Ce couplage peut conduire à un dépôt périodique d'énergie à la surface d'un métal. Dans la section précédente 2.2.3.1 nous avons étudié l'influence des modifications transitoires des propriétés optiques sur la formation des LIPSS. Dans ce cadre, le dépôt périodique de l'énergie à la surface d'un métal sous l'influence de l'excitation d'un plasmon de surface par l'intermédiaire du réseau de couplage est supposé être responsable de la génération des LIPSS [GCP11].

### **b) Variation périodique des propriétés viscoélastiques**

L'incidence d'une impulsion sur la surface d'un matériau peut créer des défauts, qui peuvent être responsables des changements des propriétés viscoélastiques. Le terme viscoélastique est défini comme caractérisant un comportement mécanique particulier intermédiaire entre le comportement d'un solide et celui d'un liquide. La génération des défauts à la surface d'un matériau peut donner lieu à une instabilité de surface. Comme nous l'avons vu dans la section 2.2.3.2, ces défauts peuvent favoriser une excitation des plasmons de surface, en produisant sur la surface du matériau un dépôt périodique d'énergie qui constitue le processus initial de la génération des LIPSS. Röntzsch et al citent dans leur article [RHS07] que les calculs de la conduction montrent que les champs de la température périodique à la surface du matériau se traduisent par des effets thermo-capillaire et que la tension de surface peut induire la modulation.

## **4. Conclusion**

Dans ce chapitre, nous avons rappelé les principes généraux de l'interaction laser matière. Dans le cadre de notre travail nous nous intéressons spécifiquement aux métaux. Nous avons également abordé les mécanismes d'interaction laser femtoseconde-métaux et les processus d'absorption du laser dans ce cas-là. Une présentation des plasmons de surface, leur condition d'excitation par un faisceau laser et les mécanismes de relaxation électron-phonon ont également été présentés. Ensuite, nous avons passé en revue les principaux paramètres influant sur la formation des LIPSS et présenté quelques hypothèses expliquant les mécanismes de la formation de ces structures. Enfin, nous avons brièvement abordé notre hypothèse sur la formation des LIPSS, cette approche sera détaillée dans les chapitres suivants. Nous commencerons tout d'abord, par une description du dispositif expérimental utilisé dans le cadre de cette étude ainsi qu'une présentation des différents instruments permettant l'analyse de nos résultats.

## *Chapitre II*

### *« Dispositifs expérimentaux »*

Résumé : ce chapitre présente les différents dispositifs expérimentaux utilisés dans les deux laboratoires : « LaHC » à Saint Etienne (France) et Laboratoire « LS/Chair Experimentalphysik II » à Cottbus (Allemagne).

## **1. Introduction**

Dans ce chapitre, nous présenterons les différents moyens expérimentaux utilisés dans le cadre de ce travail réalisé en collaboration sous la cotutelle de deux laboratoires ; le Laboratoire “principal” Hubert Curien de l’Université Jean Monnet à Saint Etienne, et le Laboratoire LS/Chair Experimentalphysik II de l’Université de Brandenburgische Technische à Cottbus. Nous commencerons par une description détaillée de la chaîne laser utilisée dans les deux laboratoires. Nous exposerons également dans ce chapitre les dispositifs de mise en forme temporelle des impulsions laser femtoseconde suivant deux techniques différentes (SLM et Michelson) ainsi que le système de caractérisation des impulsions (d’auto et de cross corrélation). Enfin, nous présenterons les différentes techniques de caractérisation des échantillons après une irradiation laser femtoseconde et la méthode de mesure d’énergie laser. Une illustration de LIPSS formées sur un échantillon de Tungstène sera présentée.

## **2. Système laser femtoseconde**

Le dispositif expérimental utilisé pour cette étude, au sein du laboratoire principal d'accueil est composé d'un laser de durée d'impulsion 150 fs, et de longueur d'onde 800 nm avec une fréquence de 1 kHz. Le système laser utilisé au sein du laboratoire à Cottbus est constitué quant à lui d'un laser générateur d'impulsions laser amplifiées par un Titane-Saphir ( $\tau$  pulse  $\approx$  120 fs;  $\lambda=800$  nm; fréquence : 1 kHz).

### **2.1. Chaîne laser femtoseconde**

#### **2.1.1. Laboratoire Hubert Curien (Saint Etienne)**

Le système laser que nous utilisons est composé d'une chaîne laser femtoseconde amplifiée. Nous présentons ci-dessous les différentes composantes de ce système laser :

- \* Un oscillateur Titane-Saphir délivrant des impulsions laser ultra-courtes de 100 fs, centrées à 800 nm, avec une cadence de 80 MHz. C'est un système à blocage de mode de type « Vitesse Duo », commercialisé par Cohérent. Il comprend un laser de pompe Verdi émettant dans le vert.

- \* Un laser de pompe YLF (Yttrium Lithium Floride) commercialisé par Thalès produisant des impulsions nanosecondes avec une puissance de 16 W et une cadence de 1 kHz.

- \* Un amplificateur de type Concerto à deux étages d'amplifications : l'amplificateur régénératif et l'amplificateur multi-passages, commercialisé par Thalès.

Le schéma présenté dans la figure 2.1 montre les différentes chaînes du système laser qui servira dans toutes les expériences réalisées dans le cadre de cette étude au sein du Laboratoire Hubert Curien (LaHC).

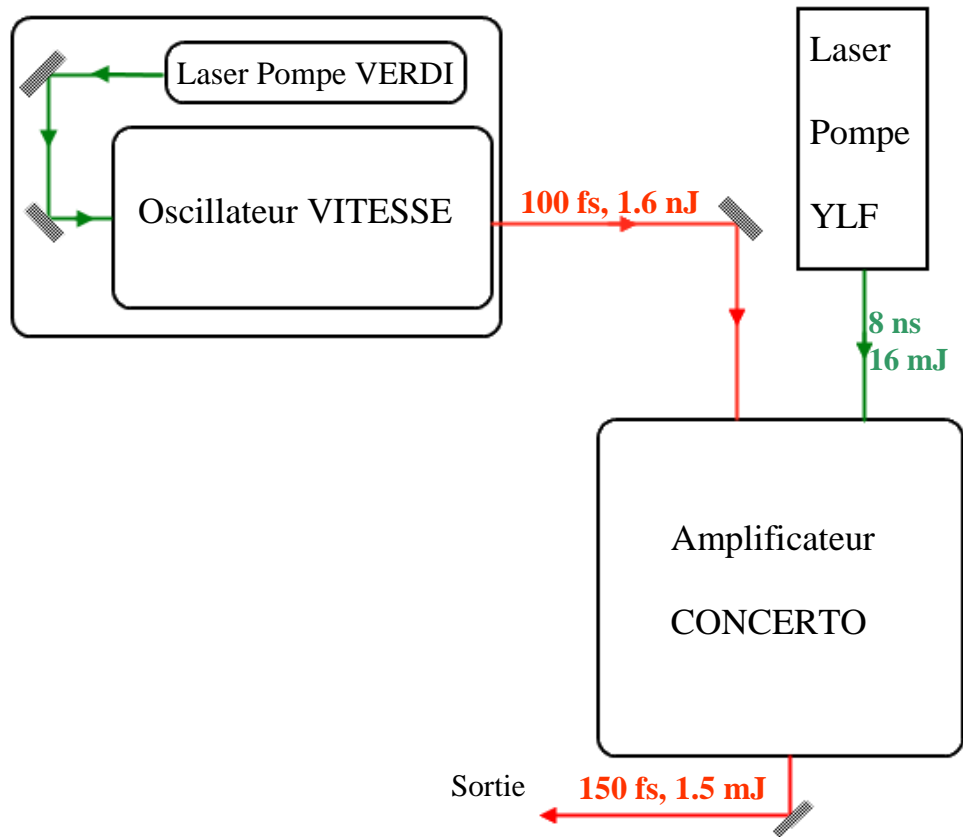


Figure 2.1. Description des différents éléments de la chaîne laser femtoseconde amplifiée utilisée au LaHC.

Nous commencerons ici par une description de la chaîne de l'oscillateur, premier élément du système laser. L'oscillateur Vitesse est constitué d'une cavité asymétrique dans laquelle est placé le cristal d'oxyde d'aluminium dopé au titane ( $\text{Ti} : \text{Al}_2\text{O}_3$ ), plus couramment, appelé Titane-Saphir qui est le milieu gain. Ce cristal a un spectre de fluorescence qui se situe entre 650 à 1100 nm avec un maximum autour de 800 nm. C'est cette large bande de fluorescence qui permet d'obtenir des impulsions courtes à une longueur d'onde de 800 nm. L'oscillateur est pompé par un laser à diode de type Verdi. Le milieu de gain de ce dernier est un cristal de Gadoline Orthovanadate dopé Néodyme ( $\text{Nd} : \text{YVO}_4$ ) dont la bande d'émission centrée autour de 1064 nm, la seconde harmonique du faisceau du laser est ensuite générée grâce à un cristal doubleur (LBO). Le fonctionnement impulsionnel délivré par l'oscillateur est assuré par un système classique de blocage de mode par lentille de Kerr (Kerr-Lens Modelocking). En effet l'effet Kerr



## Chapitre II.

est un phénomène qui permet de concentrer spatialement la partie la plus intense du faisceau lors de son interaction avec le cristal. L'oscillateur Titane-saphir que nous utilisons est fabriqué par Cohérent. Il délivre des impulsions laser ultra-courtes d'une durée d'impulsion de 100 fs, centrées sur la longueur d'onde de 800 nm avec 1.6 nJ par impulsion et le taux de répétition est de 80 MHz. Une telle énergie est suffisante pour certaines applications, mais dans de nombreux cas il est nécessaire d'avoir recours à une amplification optique du faisceau pour obtenir des énergies plus importantes par impulsion. Ceci est le rôle de l'amplificateur qui peut augmenter l'énergie de l'impulsion jusqu'à atteindre le mJ à un taux de répétition de 1 kHz, soit une amplification de l'ordre de  $10^5$ . Dans cette section, nous nous attarderons sur la description des différentes composantes de notre système d'amplification et sur son principe de fonctionnement. Notre système amplificateur est de type CONCERTO, commercialisé par Thalès et se compose de trois parties présentées dans la figure 2.2.

Le premier élément de la chaîne est un étireur, puis une cavité Titane saphir pompé par un laser Nd : YLF (Yttrium Lithium Fluoride) et enfin un compresseur. Pour plus de détails concernant l'amplification d'impulsions femtoseconde on peut se référer aux références [LS01, Gui09 et Leh03].

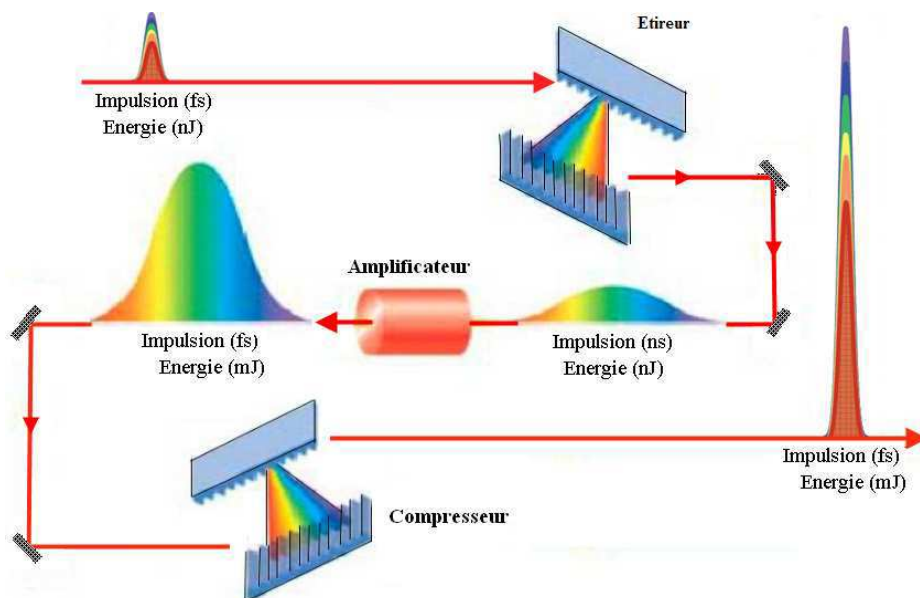


Figure 2.2. Principe de l'amplification à dérive de fréquence.

## Chapitre II.

Afin de pouvoir réaliser une amplification sans dommage pour le milieu de gain (cristal Ti-saphir), l'impulsion source provenant de l'oscillateur (100 fs) est étirée temporellement de façon à diminuer sa puissance crête.

Le principe de l'étirement temporel de l'impulsion consiste à séparer le chemin optique parcouru par chacune des longueurs d'onde composant le spectre de l'impulsion, l'étirement est réalisé à l'aide de système de réseaux, en séparant spatialement les composantes spectrales de l'impulsion issue de l'oscillateur.

L'augmentation de l'énergie de l'impulsion étirée se déroule ensuite en deux étapes. Dans les deux cas, l'amplification consiste à réaliser une inversion de population dans la cavité de l'amplificateur. L'inversion de population dans les milieux de gain (cristal Ti-saphir) est réalisée par un laser de pompe de type YLF, de durée d'impulsion d'environ 8 ns et d'énergie 16 mJ à 1 kHz (longueur d'onde d'émission centrée à 532 nm). Les impulsions sont ensuite amplifiées par l'intermédiaire d'amplificateurs, dans un premier temps, un amplificateur multipassage est utilisé. Ce type d'amplificateur possède une structure de type papillon centrée sur un cristal de Ti : Saphir (figure 2.3), permettant des passages successifs dans le milieu de gain pour plusieurs amplifications successives du faisceau sans l'utilisation d'une cavité résonnante [GES91].

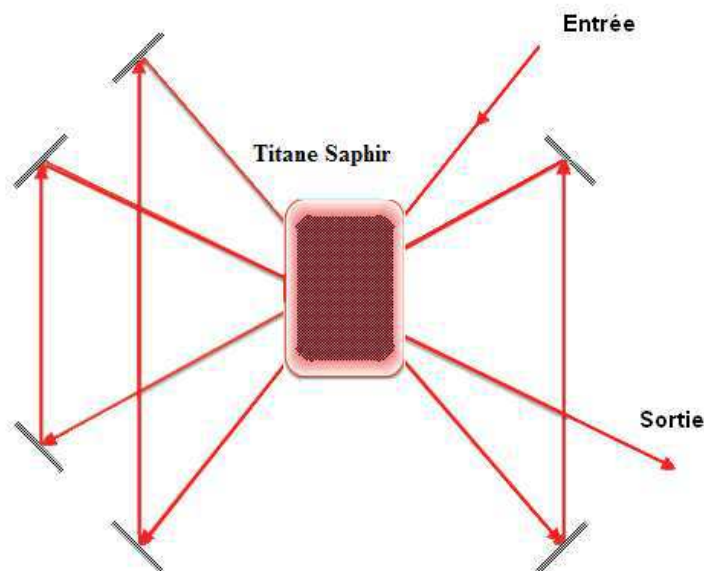


Figure 2.3. Schéma de principe de l'amplificateur multipassage [Gui09].

## Chapitre II.

La seconde étape d'amplification s'appuie sur un amplificateur régénératif et consistant à piéger une impulsion dans un résonateur laser. Pour ce faire, on utilise une cellule de Pockels (cristal de KDP sur lequel on applique une tension) associée à la présence d'un polariseur jouant le rôle de porte pour le faisceau (figure 2.4). Une fois piégée, l'impulsion va s'amplifier par passages successifs dans un milieu à gain. Lorsqu'elle a totalement dépeuplé le gain, elle est rejetée de la cavité en appliquant un deuxième échelon de tension à la cellule de Pockels. Ainsi, quel que soit le gain par passage, il y aura toujours un nombre de passage suffisant pour lequel la totalité de l'énergie stockée dans le milieu amplificateur sera extraite.

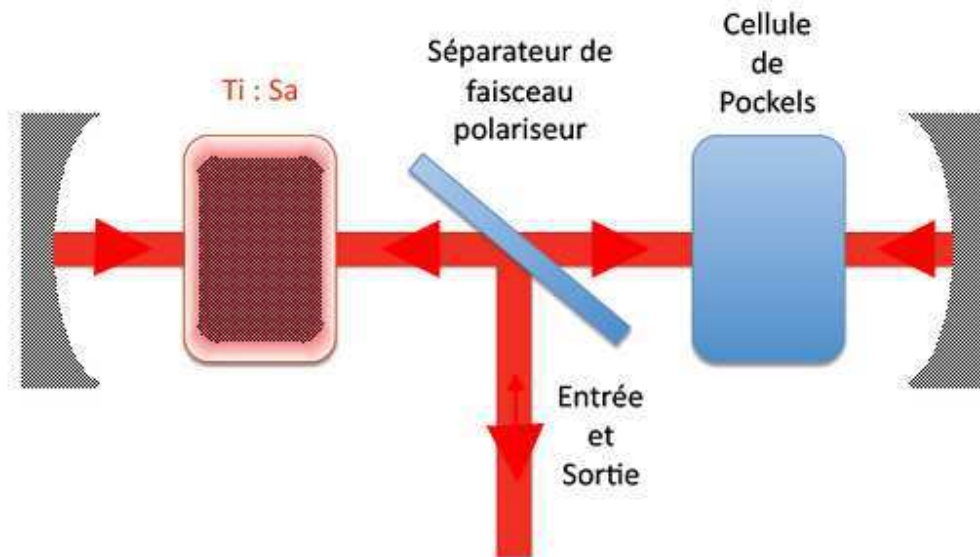


Figure 2.4. Schéma de principe de l'amplificateur régénératif [Gui09].

Afin d'obtenir des impulsions femtoseconde amplifiées en énergie, on a recours à l'utilisation d'un compresseur qui comprime l'impulsion en sortie du système d'amplification jusqu'à obtenir une durée de l'impulsion égale à la durée d'impulsion initiale, c'est à dire, avant l'étirement. Le compresseur est formé d'un système de réseaux (Figure 2.2).

## Chapitre II.

Les impulsions laser issues de l'oscillateur femtoseconde étirées, amplifiées puis recompressées peuvent atteindre les différentes spécifications du laser présenté dans le tableau ci-dessous :

Energie d'impulsion	1.5 mJ
Durée d'impulsion	150 fs
Longueur d'onde	800 nm
Fréquence de répétition	1 kHz

Tableau 2.1 : Spécifications du système laser femtoseconde au LaHC à Saint Etienne.

### 2.1.2. Laboratoire LS ExperimentalphysikII (Cottbus)

Dans le cadre de notre collaboration avec le laboratoire LS ExperimentalphysikII à Cottbus, le système laser utilisé est basé sur même mode de fonctionnement que le système utilisé au laboratoire (Hubert Curien) à Saint Étienne traité dans le paragraphe précédent.

L'oscillateur de type Tsunami (modèle 3960, Spectra-Physics), fournit des impulsions de durée inférieure à 80 fs et supérieure à 75 kW en puissance de crête, correspondant à des énergies dans la gamme nano-Joule et un taux de répétition de 1kHz.

L'oscillateur est pompé par le rayonnement à 532 nm délivré par un laser continu de type Nd: YVO4 laser (Millenia V, Spectra Physics). Pour augmenter l'énergie des impulsions nous disposons d'un système d'amplificateur utilisant les deux techniques d'amplification générative et multipassage présentées précédemment. Le tableau ci-dessous présente les différentes spécifications du système laser utilisé à Cottbus :

Energie d'impulsion	1 mJ
Durée d'impulsion	100 fs
Longueur d'onde	800 nm
Fréquence de répétition	1 kHz

Tableau 2.2 : Spécifications du Système laser à Cottbus.

## Chapitre II.

Nous disposons au laboratoire LaHC à Saint Etienne d'un système de mise en forme temporelle des impulsions femtosecondes et d'un système auto et cross-corrélation permettant de mesurer la durée d'impulsion et de contrôler le délai entre les doubles impulsions. Nous disposons également au Laboratoire ExperimentalphysikII à Cottbus d'un système de caractérisation de faisceau laser et d'un système de filtrage spatial de faisceau.

Les paragraphes suivants présentent les principes de fonctionnement des différents systèmes utilisés dans le cadre de cette étude.

### **2.2. Mise en forme temporelle des impulsions femtosecondes**

Deux techniques de mise en forme temporelle des impulsions laser femtoseconde ont été utilisées. Nous décrivons à la suite chacune de ces technologies, en précisant les avantages et inconvénients de chacune de ces techniques, utilisées dans les deux laboratoires d'accueil de cette thèse.

#### **2.2.1 Filtrage spectral variable par modulateur spatial de la lumière (SLM)**

Nous avons utilisé un système de mise en forme temporelle des impulsions ultra-courtes, qui permet entre autre de générer des doubles impulsions avec une bonne maîtrise du délai existant entre les deux impulsions femtosecondes. Cela a été utilisé en vue de mettre en évidence l'effet de doubles impulsions femtoseconde sur la formation des LIPSS et de déterminer les liens entre les propriétés électroniques des matériaux, les impulsions femtoseconde et la formation des LIPSS. Dans cette partie nous exposerons les différents dispositifs constitutifs de notre système de mise en forme temporelle des impulsions. Les développements de ce paragraphe sont largement inspirés des travaux de A.M. Wiener [Wei00] ainsi que des articles de M. Wollenhaupt [WAB07].

Nous disposons au LaHC d'un système modulateur spatial de lumière (Spatial Light Modulator SLM) de type Jenoptik SLM-S640 [SHA05]. Cette technique SLM a été développée pour la première fois au sein du Laboratoire LaHC par Razvan Stoian. Ce système permet une modulation de phase d'impulsions dans l'espace réciproque

## Chapitre II.

conduisant à une mise en forme temporelle dans l'espace direct. La figure 2.5 présente la configuration de type de 4-f pour la mise en forme d'impulsion. Cette structure est composée de deux réseaux : le premier réseau disperse les composantes fréquentielles du faisceau laser incident et le deuxième re-comprime les impulsions parvenues d'un modulateur de phase « SLM ». Le Modulateur « SLM » permet de moduler indépendamment la phase et/ou l'amplitude de chaque composante fréquentielle. Il est placé au centre du plan de Fourier de deux lentilles (Figure 2.5). Le « SLM » est composé d'un masque de phase à cristaux liquides (Figure.2.6 (b)).

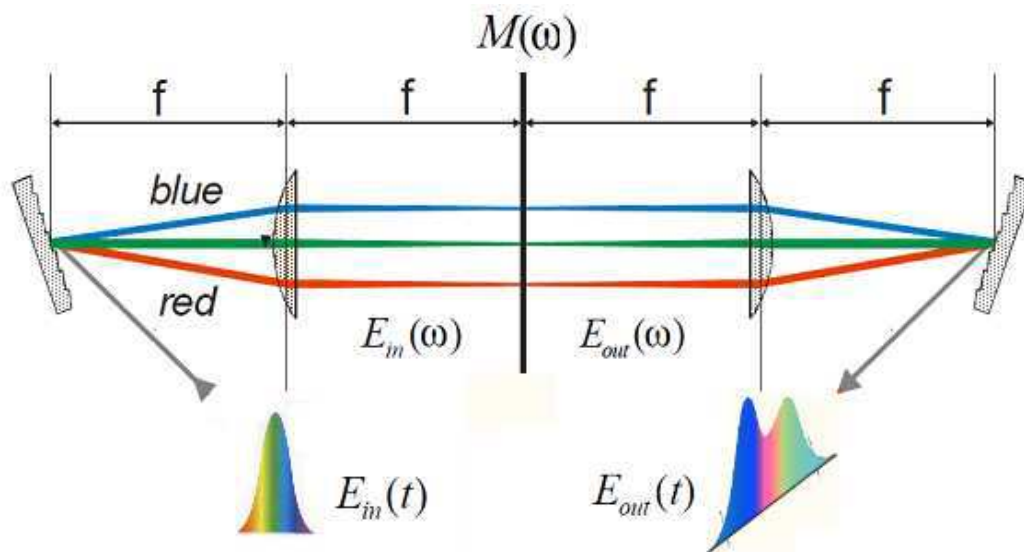


Figure 2.5 : Configuration « 4-f » de la mise en forme d'impulsion,  $M(\omega)$  modulateur SLM placé au plan de Fourier, deux réseaux, deux lentilles et  $E_{in}(t)$  l'impulsion d'entrée et  $E_{out}(t)$  l'impulsion de sortie.

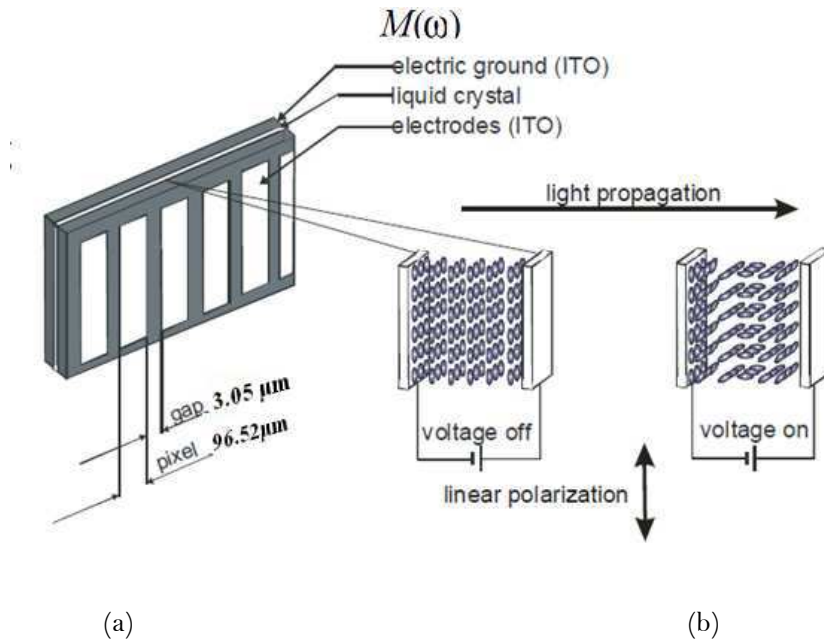


Figure 2.6 : Le modulateur de phase SLM constitué de deux électrodes d'indium dopé à l'étain (ITO) et des cristaux liquides entre les deux électrodes (a). (b) montre un changement de l'orientation des cristaux liquides en présence et en absence d'une tension, d'après [WAB07].

Les molécules d'un cristal liquide peuvent être représentées par un ellipsoïde allongé, ces molécules n'étant pas rigidement liées les unes aux autres voir (Figure 2.6 (b)). Elles peuvent donc tourner ou glisser sous l'effet de l'application d'un champ électrique entre deux électrodes d'indium dopé à l'étain (ITO).

En présence d'un champ électrique extérieur, (une tension  $U$  appliquée entre les électrodes), un dipôle électrique est induit dans les molécules qui se polarisent et s'orientent en fonction de la direction du champ électrique appliqué. On peut obtenir une modulation d'amplitude ou de phase grâce à la propriété de grande biréfringence des cristaux liquides. En effet, une propriété très utile des cristaux liquides est leur grande biréfringence  $\Delta n = n_e - n_o$ , qui peut atteindre facilement 0.2 dans les cristaux liquides. Cela dépend de l'orientation des molécules par rapport à la direction du faisceau optique polarisant. On peut alors obtenir une modulation d'amplitude ou de phase en choisissant un masque  $M(x)$ . Dans le dispositif que nous utilisons, nous nous limitons à la mise en forme temporelle des impulsions par la modulation de phase de l'impulsion. Pour générer une modulation de phase, on considère le cas d'une cellule à cristaux liquides nématiques

## Chapitre II.

non twistés. Une polarisation rectiligne parallèle à l'orientation des molécules de cristal liquide reste rectiligne, mais subit un déphasage exprimé par [Mon05] :

$$\varphi = \frac{2\pi(n_e - n_o)e}{\lambda} \quad (2.1)$$

Où  $e$  est l'épaisseur de la couche de cristaux liquides et  $\lambda$  la longueur d'onde du faisceau incident. Ce déphasage dépend de l'amplitude de rotation des molécules, on peut donc contrôler en faisant varier la tension appliquée. Ainsi la variation de  $(n_e - n_o)$  dépend de la tension appliquée [Mon05].

Le principe de la mise en forme temporelle d'impulsion laser femtoseconde est montré dans la figure ci-dessous (Figure 2.7) où l'on génère un retard pour les différentes composantes spectrales dispersées dans le masque de phase « SLM ». Ce système de mise en forme temporelle des impulsions laser femtoseconde est contrôlé par un ordinateur sous un programme géré par LabView. Ce programme permet de contrôler le délai entre les doubles impulsions ou bien générer des formes temporelles quelconques sur une plage temporelle maximale de 20 ps. En outre, nous avons eu recours également à différentes méthodes ou techniques développées au sein du laboratoire comme celle de l'utilisation de l'auto/cross corrélation que nous détaillerons dans le paragraphe 2.3. Ce dispositif nous permet de contrôler la durée des impulsions ultra-courtes et le délai entre double impulsions [Gui09].



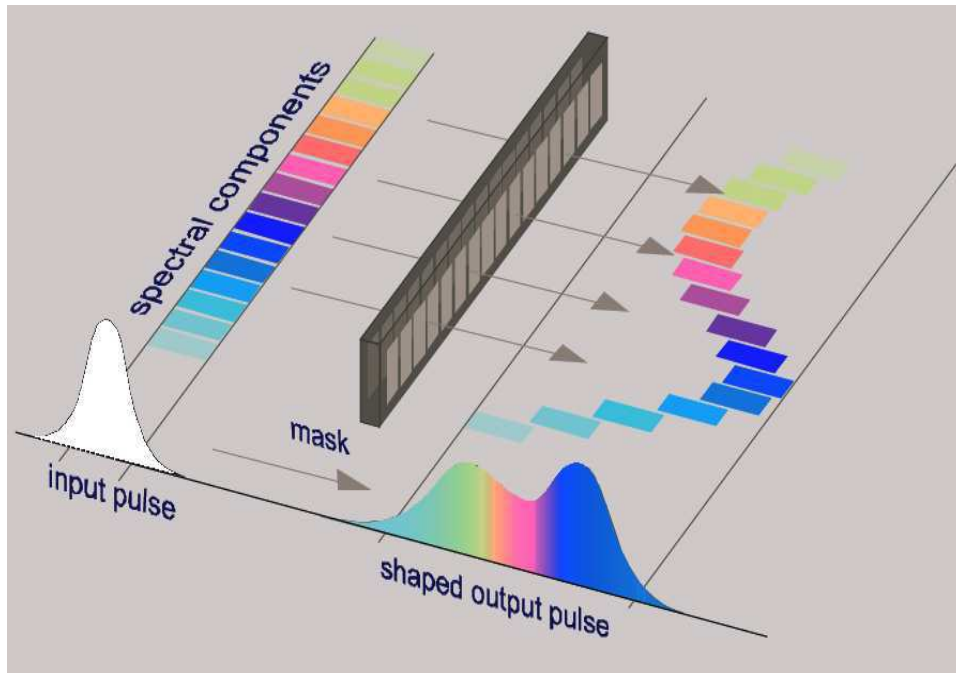


Figure 2.7. Illustration schématique de la mise en forme temporelle d'une impulsion ultra-courte par le retardement de différentes composantes spectrales dispersées dans un masque de phase SLM, situé dans le plan de Fourier d'après [WAB07].

### 2.2.2. Génération de doubles impulsions par Interféromètre Michelson

Dans le cadre de la collaboration avec le Laboratoire ExperimentalphysikII à Cottbus, nous avons pu compléter notre étude sur l'effet de double pulse sur la formation des LIPSS. La génération de doubles impulsions femtoseconde se fait dans ce cas, grâce à un interféromètre de Michelson. L'interféromètre de Michelson est un dispositif qui permet de contrôler le délai entre deux impulsions. Nous détaillerons dans cette partie les différentes composantes de l'interféromètre de Michelson ainsi que les conditions expérimentales dans lesquelles nous avons effectué nos expériences. La Figure 2.8 présente le dispositif expérimental qui est composé de deux miroirs : l'un fixe et l'autre se déplaçant sur une platine de translation ce qui a pour but de pouvoir retarder les impulsions les unes par rapport aux autres. Le dispositif comporte également une lame séparatrice à 50 %, dont le rôle est de séparer l'impulsion incidente en deux impulsions identiques. Le retard des impulsions généré par le déplacement du miroir mobile vérifie la relation ci-dessous :

$$\tau = \frac{2d}{c} \quad (2.2)$$

$\tau$  est le délai entre les deux impulsions (en seconde),  $d$  est la distance spatiale entre les deux impulsions et  $c$  la vitesse de la lumière dans le vide.

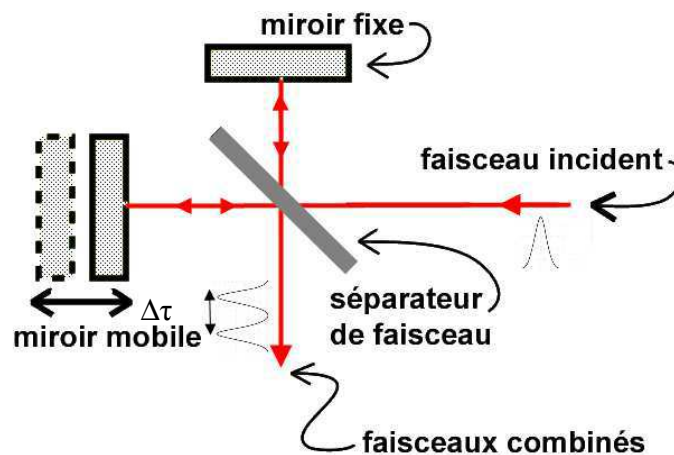


Figure 2.8. Principe de l'interféromètre de Michelson.

Pour obtenir un délai de 0 s entre deux impulsions par ce système d'interféromètre de Michelson (les deux miroirs sont à équidistance de la lame séparatrice du faisceau (50%), nous nous sommes servis d'une camera CCD, dotée d'un programme ("Spiricon Laser Beam Analyzer"). Cette caméra nous permet d'observer la variation de l'intensité du faisceau laser lors du recouvrement des deux faisceaux réfléchis par les deux miroirs du Michelson que l'on place de manière à obtenir un délai de 0 s, comme présenté dans le paragraphe suivant. L'intensité du faisceau laser à un délai de 0 s entre deux impulsions est 4 fois supérieure à l'intensité de faisceaux laser pour des délais supérieurs à 0 s entre deux impulsions. Après avoir obtenu la position de 0 s de délai entre deux impulsions, nous déplaçons le second miroir du Michelson par un système de translation nous permettant d'obtenir différents délais entre les doubles impulsions en appliquant la formule de l'équation 2.2. Le tableau ci-dessous présente

## Chapitre II.

quelques avantages et inconvénients des deux différents systèmes de mise en forme SLM/Michelson :

	Avantages	Inconvénients
<u>SLM</u> (Laboratoire Hubert Curien St Etienne)	<ul style="list-style-type: none"><li>- Possibilité d'ajuster les différentes caractéristiques de la double impulsion (Energie, Durée, Délai...).</li><li>- Utilisation facile et rapide.</li><li>- Grande précision dans le réglage du délai entre deux impulsions.</li><li>- Possibilité de générer des impulsions de forme temporelle quelconque.</li></ul>	<ul style="list-style-type: none"><li>- Le délai maximum entre deux impulsions est limité à 20 ps.</li></ul>
<u>Michelson</u> (Laboratoire Experimentalphysik II à Cottbus)	<ul style="list-style-type: none"><li>- Le délai maximum entre deux impulsions est limité à 300 ps.</li></ul>	<ul style="list-style-type: none"><li>- les réglages préliminaires sont très longs.</li><li>- Faible précision dans le réglage du délai entre deux impulsions.</li></ul>

Tableau 2.3 : Avantages et inconvénients des deux différentes techniques de mise en forme SLM/Michelson

## 2.3. Caractérisation temporelle des impulsions mise en forme

### 2.3.1. Auto-cross corrélation

Nous présentons dans cette partie la méthode de caractérisation des impulsions laser femtosecondes et doubles impulsions femtoseconde qui a été utilisée. Après avoir procédé à la mise en forme temporelle des impulsions laser femtoseconde, on utilise un système d'auto/ cross-corrélation adapté à la mesure de la durée d'une impulsion (Full Width at Half Maximum FWHM), ainsi que du délai entre les deux impulsions. Cette méthode de caractérisation est basée sur l'analyse du profil spatial du faisceau produit par doublage de fréquence lorsque deux impulsions se croisent dans un cristal non linéaire. A titre d'exemple, la durée réelle de l'impulsion  $\tau$  pour une impulsion de type Gaussienne, s'exprime à partir de la durée donnée par la trace d'auto-corrélation  $\tau_{AC}$  comme [WAB07]:

$$\tau = \frac{1}{\sqrt{2}} \tau_{AC} \quad (2.3)$$

Néanmoins, une même trace d'auto-corrélation peut souvent provenir de plusieurs formes d'impulsions différentes. Il faut donc faire interagir l'impulsion à mesurer avec une impulsion de référence. Sa durée doit être faible par rapport à la durée de l'impulsion à étudier pour que l'on puisse l'assimiler à un « pic de Dirac ». On parle alors de cross-corrélation. La Figure 2.9 montre le principe de caractérisation de l'impulsion femtoseconde par une méthode d'auto corrélation intensimétrique. A l'aide d'un interféromètre de Michelson, l'impulsion incidente, de champ électrique  $E(t)$  est séparée en deux parties identiques, décalées temporellement d'un délai  $\tau$ . Ces deux impulsions sont superposées dans un cristal de doublage de fréquence (BBO), afin d'enregistrer l'intensité par une photodiode. La génération de seconde harmonique est proportionnelle au recouvrement des deux impulsions des deux faisceaux dans le cristal (BBO).

Chapitre II.

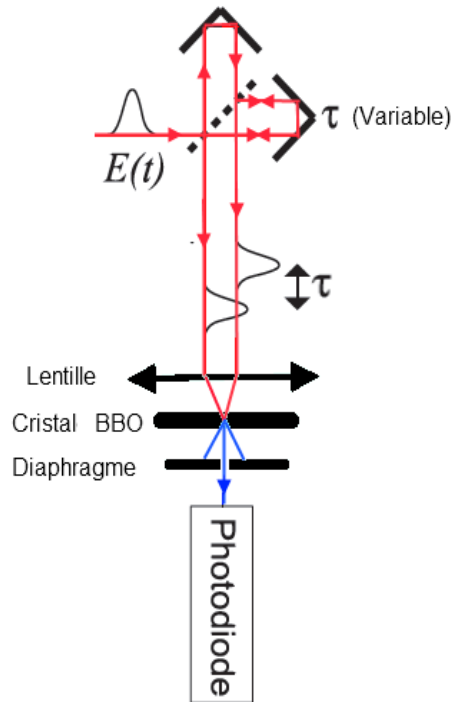


Figure. 2.9. Schéma de principe de fonctionnement du corrélateur, composé d'une lentille, un diaphragme pour filtrer le signal, une photodiode, un cristal BBO et deux miroirs dont un est fixe et l'autre mobile sur une platine permettant d'avoir un délai entre deux impulsions[SGL87].

L'intensité de la seconde harmonique générée  $I_2(t)$  s'écrit en fonction du délai  $\tau$  [WAB07] :

$$I_2(t, \tau) = I(t)I(t - \tau) \quad (2.4)$$

Tels que :  $I(t) = |E(t)|^2$  est l'intensité de l'impulsion à caractériser,  $I_2(t, \tau)$  est détecté par la photodiode et  $I(t - \tau)$  est l'intensité qui se caractérise par un temps de réponse très grand devant la durée de  $I_2(t, \tau)$ . On en déduit l'équation (2.5), qui présente l'expression du signal d'auto-corrélation  $A_{ac}(\tau)$  [WAB07] :

$$A_{ac}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t)I(t - \tau)dt \quad (2.5)$$

## Chapitre II.

La technique de l'auto-corrélation nous permet de mesurer la durée de l'impulsion femtoseconde laser (centrée à 800 nm avec une cadence de 1kHz). Le résultat de la mesure est une durée autour de 150 fs.

La mesure du délai entre les deux impulsions se fait à l'aide d'une autre technique appelée Cross-corrélation. Dans le principe, cette technique est tout à fait identique à celle de l'auto-corrélation. Les schémas (a) et (b) de la figure 2.10 illustrent ces deux différentes techniques. Le schéma de la figure 2.10 (b) représente le principe de la cross-corrélation, avec une impulsion de référence afin de caractériser notre impulsion selon l'équation (2.4). Cette technique de Cross-corrélation sert à mesurer le délai entre double pulse. Le signal de cross-corrélation à la sortie de cristal BBO est sous la forme suivante [WAB07] :

$$A_{ac}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t - \tau)\delta(t)dt \quad (2.6)$$

Cette méthode de caractérisation est relativement bien adaptée aux impulsions mises en forme. En effet, elle permet la caractérisation d'impulsions complexes, composées de plusieurs parties distinctes étalées dans le temps.

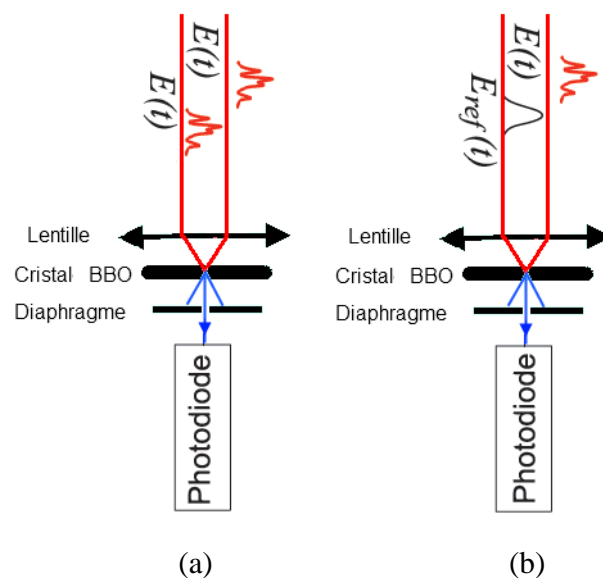


Figure. 2.10 : (a) schéma de principe de l'auto-corrélation, (b) schéma de principe de cross-corrélation [SGL87].

## Chapitre II.

Le corrélateur avec ses deux modes de fonctionnement fournit un outil de caractérisation de la mise en forme des impulsions laser femtoseconde indispensable à nos études.

### 2.3.2. Caractérisation spatiale de faisceau laser

Dans cette partie, nous présentons la technique utilisée pour la caractérisation spatiale du faisceau laser au sein du laboratoire ExperimentalphysikII à Cottbus. Pour analyser les impulsions laser femtosecondes, nous nous servons d'une camera CCD, dotée d'un programme "Spiricon Laser Beam Analyzer". Cette caméra est utilisée pour vérifier les bons réglages de la position et de l'intensité des deux faisceaux issus de l'interféromètre de Michelson. Elle nous permet également d'avoir un meilleur ajustement lors du recouvrement des deux faisceaux laser en position zéro. L'image de la figure 2.11, montre la position initiale du recouvrement et les intensités des deux faisceaux issus de l'interféromètre de Michelson avant l'ajustement (ces intensités sont différentes après leur séparation). Nous nous servons de l'alignement des deux miroirs de Michelson (fixe et mobile), pour obtenir la même intensité pour les deux faisceaux (Image de la Figure 2.12). Enfin les miroirs de translation nous permettent d'ajuster l'alignement pour obtenir la position correcte du recouvrement des deux faisceaux (Figure 2.13).

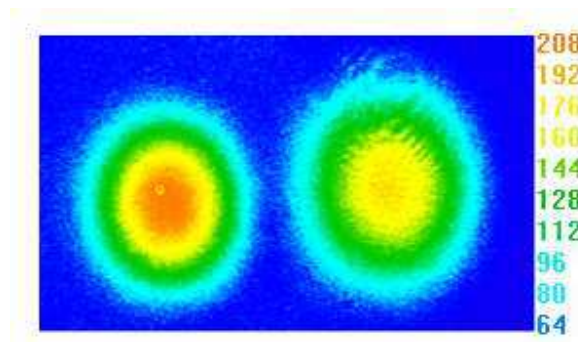


Figure 2.11. Image des deux faisceaux issus de l'interféromètre de Michelson avant la correction de l'alignement avec les deux miroirs fixe et mobile (différentes intensités et différentes tailles pour les deux faisceaux)

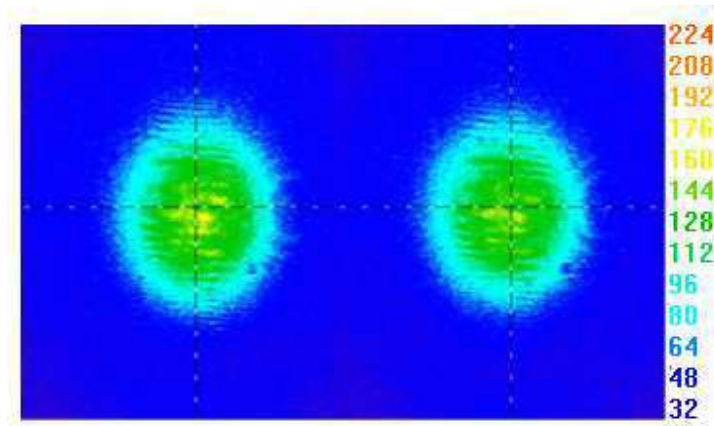


Figure 2.12. Image de deux faisceaux issus de Michelson après la correction de l'intensité avec l'alignement des deux faisceaux par deux miroirs fixe et mobile de Michelson (même intensité sur les deux faisceaux)

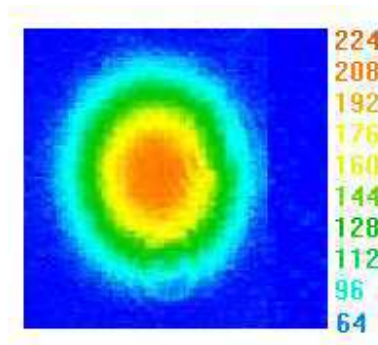


Figure 2.13. Image de deux faisceaux laser issus de Michelson avec un bon recouvrement des deux faisceaux.

#### 2.4. Filtrage spatial de faisceau : système afocal

Nous avons installé sur notre dispositif expérimental un filtrage spatial de faisceau laser et un système afocal. Ce système composé de deux lentilles et un diaphragme (Figure 2.14). Le faisceau incident est focalisé à l'aide d'une première lentille convergente, dans son plan focal image. Mais des rayons n'ayant pas la même direction ne convergeront pas au même point. Ainsi, il est possible d'éliminer des rayons en plaçant un filtre (diaphragme) dans ce plan. On peut également réduire la taille du faisceau laser si la distance focale de la lentille L1 est supérieure à la distance focale de la lentille L2.



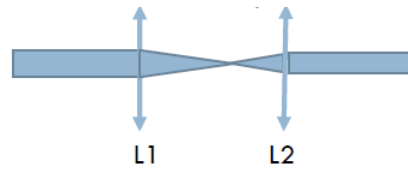


Figure 2.14. Système de filtrage spatial de faisceau (système afocal).

### 3. Dispositif d'irradiation laser

#### 3.1. Montage expérimental

Le dispositif expérimental mis en place est présenté sur la figure 2.15. Après le réglage des différentes optiques et l'optimisation de la source laser de durée d'impulsion 150 fs centrée à 800 nm et de répétition 1kHz, présentée dans la partie A de la figure 2.15, nous dirigeons le faisceau laser vers le dispositif de la partie B de la figure 2.15. Cette figure présente le montage utilisé et qui permet de faire varier différents paramètres pour obtenir différents impacts sur notre échantillon. Nous disposons également, d'un système de vision (un laser He-Ne pour éclairer notre échantillon, une camera CCD et un écran) et d'un système de translation (platine de translation) géré par un programme réalisé sous LabView (développé par Nicolas FAURE). Ce programme permet de contrôler la position de notre impact sur l'échantillon sur une échelle micrométrique.

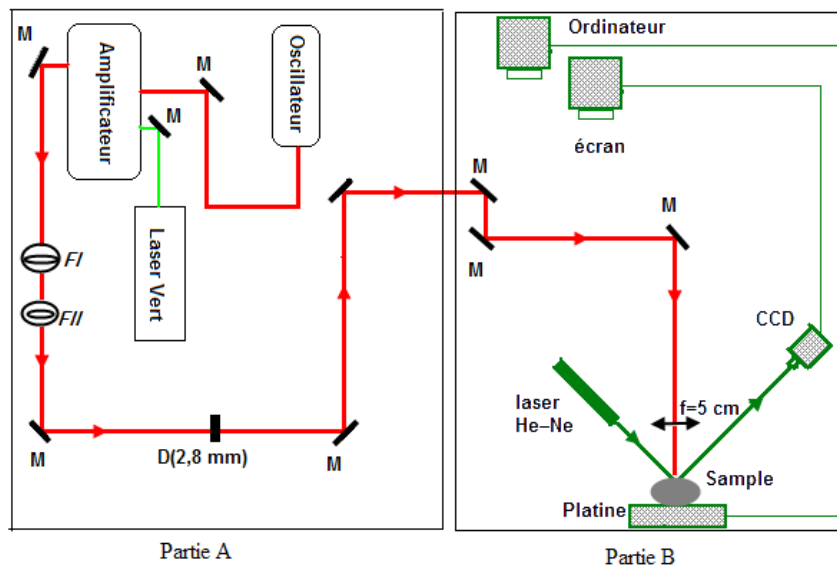


Figure. 2.15. Dispositif expérimental utilisé au cours de notre expérience.

## Chapitre II.

Dans la partie A nous utilisons un diaphragme de diamètre de 2.8 mm et deux roues de filtres de densité FI et FII de marque « New Focus » permettant d'ajuster notre puissance laser. Les filtres double roue contiennent un ensemble de filtres de densité neutre montés en une seule unité, ces filtres permettent d'avoir une large gamme de variation des densités optiques, allant de 0.08 à 3.0 par incréments de 0,1. Chaque roue comporte six filtres de diamètre 24.1 mm dont les positions sont mécaniquement indexées pour un positionnement précis. Ils sont fabriqués avec des revêtements métalliques Inconel déposés sur un substrat de verre. Dans certaines expériences, nous utilisons également une lame  $\frac{1}{2}$  onde et un polariseur pour ajuster notre puissance laser. Le réglage du nombre d'impulsions est piloté par un système de contrôle de la cellule de pockels (LaCH Saint Etienne) ou par un Shutter mécanique (Cottbus). Nous utilisons une lentille achromatique de 50.8 mm de focale pour focaliser le faisceau sur l'échantillon. Enfin nous installons notre échantillon sur le plan image du diaphragme afin de réaliser les différents impacts.

### 3.2. Réglages

Pour réaliser les réglages préliminaires du plan image de la lentille, nous réglons nos conditions expérimentales en utilisant des échantillons en inox, un matériau propre largement utilisé au laboratoire pour les phases de réglage liées aux LIPSS. Nous réglons la puissance laser sur une puissance très faible de 9.2 mW, avec un minimum de 10 impulsions permettant de marquer notre échantillon. Dans ces conditions d'énergie et de nombre d'impulsions, nous réalisons une série d'impacts sur notre échantillon en déplaçant la lentille avec un pas de 100  $\mu\text{m}$  à l'aide d'une platine de translation. Nous procédons par la suite à l'analyse des différents impacts à l'aide du microscope optique. La figure 2.16 montre les images obtenues par microscopie optique des impacts obtenus en fonction de la distance à la lentille.

Chapitre II.

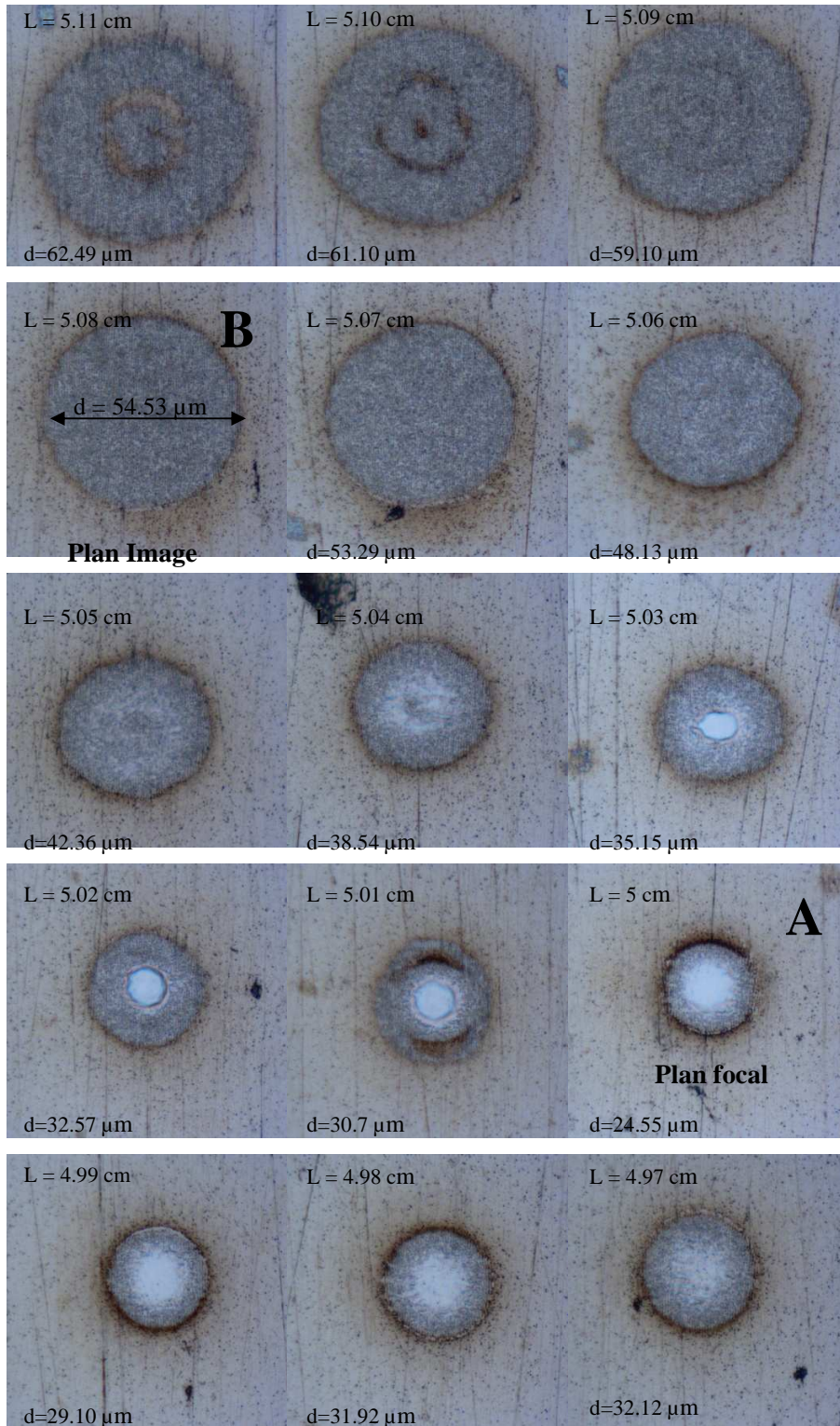


Figure 2. 16. Images réalisées par microscopie optique d'un échantillon d'inox irradié par 10 impulsions avec une puissance moyenne laser de moyenne 9.2 mW. Les images montrent la variation du diamètre de l'impact  $d$  en fonction de la distance entre la lentille et l'échantillon  $L$ .

## Chapitre II.

Les images de la figure ci-dessus nous permettent, tout d'abord, de déterminer le plan focal et le plan image de notre lentille :

- Le plan focal est situé à une distance  $L = 5$  cm entre la lentille et l'échantillon (Image A Figure 2.16), où le diamètre de l'impact irradié est plus petit ( $d = 24.55 \mu\text{m}$ ) avec une forte ablation au milieu de l'impact qui correspond à la forme gaussienne de notre faisceau laser.

- Le plan image est situé à une distance  $L = 50.8$  mm entre la lentille et l'échantillon où la forme de l'impact est plus circulaire et homogène, et le diamètre de la tache irradié est de  $d = 54.53 \mu\text{m}$  (Image B de la Figure 2.16).

En comparant nos résultats expérimentaux avec des calculs simples d'optique géométrique des diamètres des impacts au plan focal et au plan image ainsi que des distances focales et image de la lentille nous constatons que ces résultats sont approximativement équivalents. Le tableau ci-dessous récapitule l'ensemble de ces mesures et calculs effectués :

	Diamètre de l'impact (d) Calcul théorique	Diamètre de l'impact (d) Mesure expérimentale	Distance (L) Théorique	Distance (L) Expérimentale
Plan focal	18.48 $\mu\text{m}$	24.55 $\mu\text{m}$	50 mm	50 mm
Plan Image	54.68 $\mu\text{m}$	54.53 $\mu\text{m}$	50.9 mm	50.8 mm

Tableau 2.4. Comparaison des valeurs calculées et expérimentales concernant les diamètres d'impact (d) et les distances lentille-échantillon (L) pour le plan image et le plan focal. Le plan image de diamètre 54.53  $\mu\text{m}$  doit se situer à 900 microns du plan focal (calcul). La méthode de recherche visuelle, grâce au microscope, nous a amené à nous placer à 800 $\mu\text{m}$ , soit un déplacement de 100 $\mu\text{m}$ .

### 3.3. Détermination de la fluence laser

Lors de l'irradiation d'un matériau pouvant conduire à l'ablation, la fluence est un paramètre primordial. Nous définissons la fluence  $F$  ( $J/cm^2$ ) comme suit : l'énergie  $E$  (le nombre de photons  $h\nu$ ) par unité de surface du faisceau laser  $\Sigma$  :  $F = E/\Sigma$ .

En pratique, la puissance laser est évaluée par la mesure de la puissance moyenne lorsque le laser fonctionne à 1 kHz. La méthode la plus précise de calcul de la fluence est le calcul de la surface d'interaction entre laser et la cible. Ce calcul de la fluence nécessite la détermination de la taille du faisceau laser sur la cible pour déterminer de façon expérimentale la fluence, nous obtenons la surface ablatée si la fluence est supérieure à la fluence seuil, elle s'exprime sous la forme suivante :

$$\Sigma_{th} = \frac{\Sigma}{2} [\ln F - \ln F_{th}] = \frac{\Sigma}{2} [\ln E - \ln E_{th}] \quad (2.7)$$

Avec  $F_{th} = E_{th}/\Sigma$  la fluence seuil moyenne et  $E_{th}$  l'énergie minimum pour ablater le matériau.

On a donc une relation linéaire entre la surface ablatée et le logarithme de l'énergie. A partir de l'équation (2.7), la pente de la droite est la moitié de la surface du faisceau. On peut déterminer également l'énergie et la fluence seuil avec  $\ln E = \ln F = 0$ . La figure 2.17 présente un exemple d'évaluation de la taille du spot laser sur les cibles d'or et de Nickel.

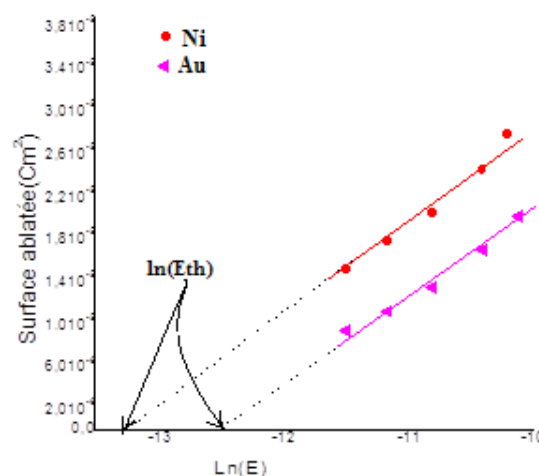


Figure 2.17. Exemple de l'évolution de la surface ablatée en fonction de logarithme de l'énergie pour deux matériaux Au et Ni.

## Chapitre II.

A titre d'exemple, la pente des courbes obtenues est égale à  $\Sigma/2 = 7.93 \cdot 10^{-6}$ . Cela conduit à une surface de spot laser de  $1.6 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^2$  et donc une fluence laser de  $0.63 \text{ J/cm}^2$  pour une puissance laser de 50 mW. Pour plus de détails sur cette méthode voir la référence [Gui09].

Les paragraphes ci-dessous, introduits les différents instruments utilisés en laboratoire, pour une caractérisation des LIPSS. On présentera brièvement, les trois différents types des microscopes utilisés : le microscope électronique, le microscope électronique à balayage (MEB) et le microscope à force atomique (AFM).

## 4. Caractérisation ex situ des échantillons

### 4.1. Microscopie Optique

L'utilisation du microscope optique est une méthode préliminaire de caractérisation, réalisée après chaque expérience d'irradiation des matériaux par le laser femtoseconde. La microscopie optique donne un accès rapide et immédiat aux différents impacts, et permet ainsi de sélectionner les résultats intéressants, pour pouvoir les analyser à l'aide d'une microscopie électronique à balayage avec une grande résolution, le but étant alors d'obtenir des précisions à l'échelle nanométrique.

L'instrument utilisé est un microscope optique LEICA FTM 200, équipé d'une caméra couleur digitale DFC 320, il est doté d'un logiciel « AxiovisionLE » développé dans un format d'image ZVI Carl Zeiss. Le microscope utilisé permet un grossissement allant de  $\times 50$  jusqu'à  $\times 1000$  et possède plusieurs méthodes de caractérisation selon les différents échantillons à étudier.

Le microscope optique est utilisé pour des analyses très rapides, ne demandant pas de haute résolution (une résolution limitée à un grossissement de 1000 fois), comme les réglages préliminaires concernant la recherche du plan image dans notre montage expérimental. Pour des analyses à haute résolution, comme celles des LIPSS à l'échelle nanométrique, nous utiliserons le microscope électronique à balayage (MEB) permettant d'obtenir une résolution satisfaisante.

## **4.2. Microscope électronique à balayage « MEB »**

Le Microscope électronique à balayage (MEB) utilisé est de type « Nova NanoSEM », commercialisé par l'entreprise FEI, il possède deux types de résolutions, la première permet de travailler en haute résolution. La seconde, appelée « mode immersion », permet une résolution maximale de 1 nm, pour un grossissement de 300000. Le microscope électronique à balayage (MEB), utilise des électrons plutôt que la lumière (des photons), pour former une image qui représente la morphologie de la surface. Le principe de fonctionnement du MEB est l'émission d'un faisceau d'électrons balayant la surface de l'échantillon à analyser (Figure 2.18). Le faisceau d'électrons primaires produits par un canon à électrons à effet de champ (Field Emission Gun), interagit avec l'échantillon provoquant ainsi l'ionisation des atomes par éjection de deux types d'électrons : les électrons «secondaires » et les électrons « rétrodiffusés ». Les électrons secondaires sont captés par un détecteur qui enregistre ces signaux pour obtenir une image topographique. La densité des électrons, quand la tension d'accélération est constante, dépend de l'angle entre la surface et le faisceau. Plus cet angle est petit, plus le nombre d'électrons secondaires émis est important, donc plus la production d'électrons secondaires est importante.

Les électrons rétrodiffusés sont envoyés par la surface en étant divisés par le cortège électronique des atomes. Leur analyse permet d'obtenir des renseignements sur la composante chimique des matériaux. En effet, le taux de rétrodiffusion dépend du numéro atomique des atomes de la zone balayée. Plus les atomes ont un numéro atomique élevé, plus la zone analysée apparaît brillante.

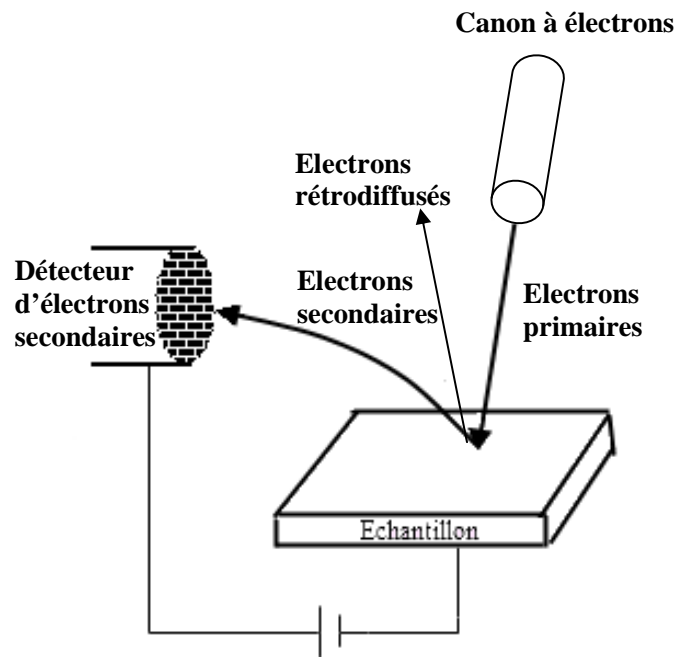


Figure 2.18. Principe de fonctionnement du microscope à balayage (MEB).

Le MEB est équipé d'un système d'évacuation pour produire un vide stable de l'ordre de  $10^{-9}$  atm, ce vide est nécessaire pour conserver la bonne qualité du faisceau, et éviter la contamination de l'échantillon. Les échantillons analysés sont de types conducteurs, donc nous n'avons pas besoin de travailler en atmosphère résiduelle. La qualité des images et la précision analytique qu'on peut obtenir avec un MEB requièrent que la tache électronique sur l'échantillon soit à la fois fine, intense et stable. L'image de la figure 2.19, présente une image de MEB réalisé au laboratoire LaHC sur les LIPSS.



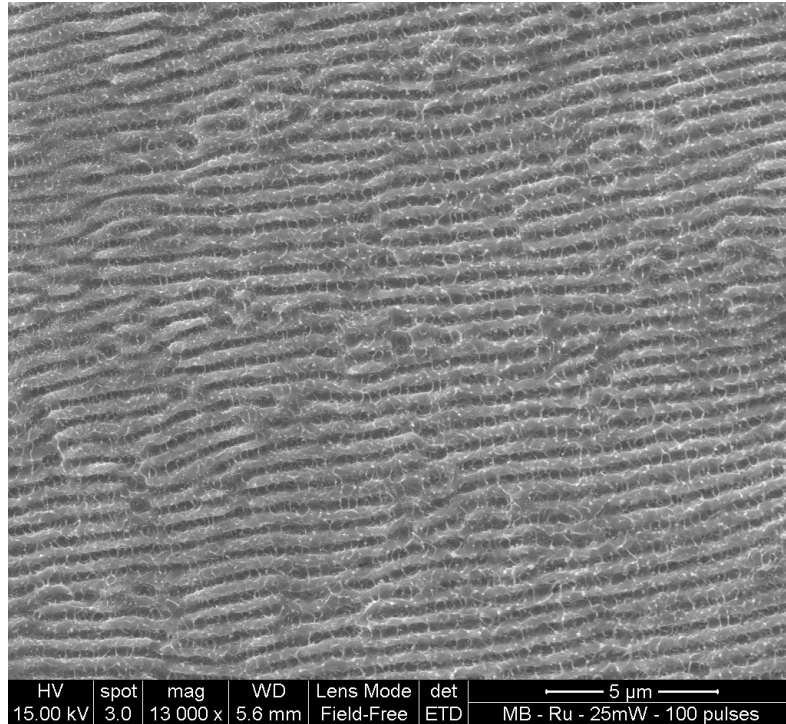


Figure 2.19 : Image MEB montrant des LIPSS formées à la surface d'une cible de Ruthénium irradié par un laser femtoseconde.

Le microscope électronique à balayage utilisé à Cottbus de marque « Zeiss EVO 40 » fonctionne suivant le même principe que celui de Saint Étienne.

### 4.3. Microscope à force atomique « AFM »

Dans les parties précédentes nous avons décrit les deux techniques de caractérisation (microscopies optiques et MEB) utilisées dans le cadre de notre étude, mais il s'avère que ces deux techniques d'analyse ne satisfont pas notre besoin d'une précision de mesure de la profondeur des LIPSS. Pour cela, nous utiliserons le microscope à force atomique AFM (Agilent 5500).

Le Microscope à Force Atomique (AFM : Atomic Force Microscope) est un microscope à sonde locale permettant de visualiser la topographie surfacique d'un échantillon avec une résolution de l'ordre du nanomètre. Son principe de fonctionnement repose sur les interactions entre l'échantillon et une pointe nanométrique montée sur un

## Chapitre II.

micro-levier, se déplaçant dans les 3 directions de l'espace via un piézoélectrique (Figure 2.20). Les forces d'interaction entre la surface sondée et la pointe, sont déduites directement de la mesure de flexion du micro-levier. Pratiquement, on mesure la réflexion d'un laser sur la pointe, pour déterminer la flexion du levier.

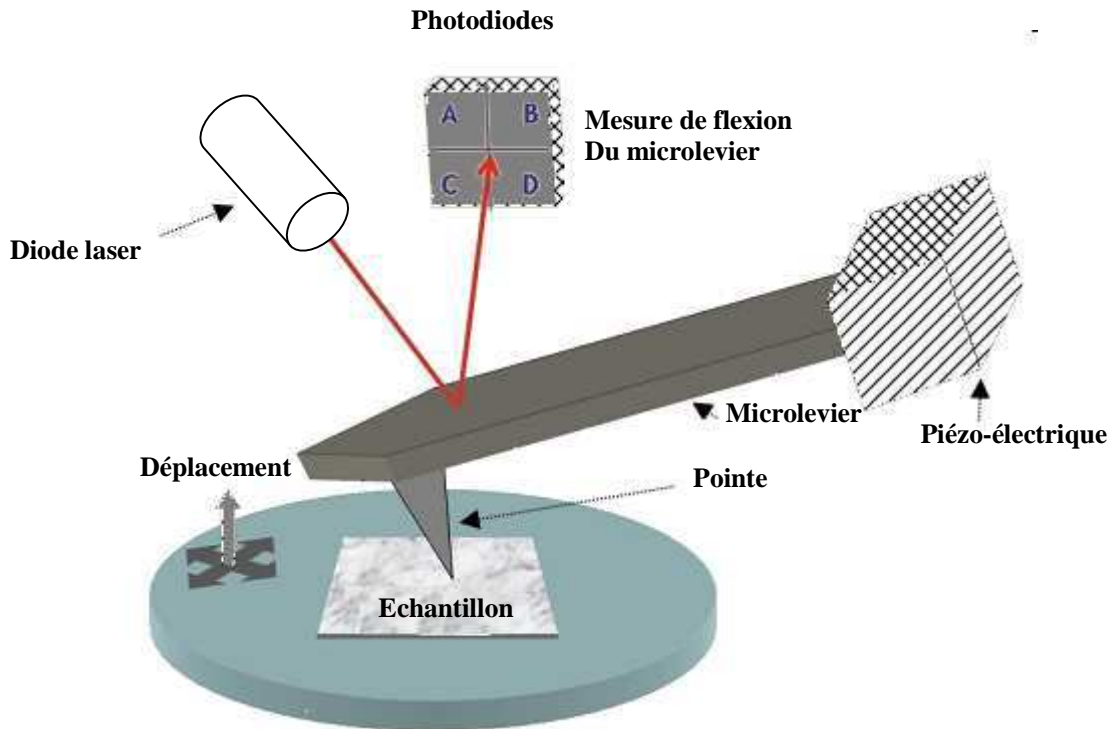


Figure 2.20 : Schéma de principe du microscope AFM montrant la détection de la déflexion du levier par faisceau laser réfléchi vers un détecteur.

Couramment, le balayage est établi selon les modes suivants :

- **Le mode contact** : Le balayage est réalisé par un contact physique entre la pointe et la surface de l'échantillon, jusqu'à la création d'une force répulsive entre les atomes de la pointe et les atomes situés à la surface. Cette force crée une déflexion du levier et sera mesurée par la photodiode, les variations des forces répulsives dues aux reliefs sont enregistrées pour donner lieu à une image topographique.

- **Le mode non-contact** : La pointe vibre verticalement (autour de sa fréquence propre), à une distance de 5 à 15 nm de la surface de l'échantillon. La force attractive, qui représente une perturbation pour les oscillations, modifie l'amplitude, la phase et la

## Chapitre II.

fréquence de la vibration en fonction de la hauteur moyenne de la pointe. L'électronique d'excitation permet de détecter cette modification en fournissant le signal électrique servant à la régulation. L'absence de contact entre la pointe et la surface demeure un avantage principal de ce mode, cela préserve la qualité de la pointe. En revanche, la force attractive (sensible généralement à la hauteur de la pointe) est beaucoup plus faible que celle de déflexion utilisée dans le mode contact, la qualité de l'image n'est donc pas aussi bonne que celle obtenue dans le premier mode. De plus, il faut ajouter que la présence d'une couche de vapeur à la surface sous conditions ambiantes peut piéger la pointe si la vibration est réalisée à une amplitude qui n'est pas suffisamment grande. Ce mode est donc peu utilisé.

- Le mode contact intermittent “ tapping mode ” : La pointe vibre à une très faible distance de la surface au point qu'elle « touche » celle-ci, lorsqu'elle est dans sa position la plus basse, le contact est donc intermittent. La force liant la pointe et la surface, varie de l'attraction à la répulsion. A l'image du mode non-contact, il est tenu en compte de garder constante la hauteur moyenne, cela est garanti en fournissant une bonne amplitude de vibration. Quant à la qualité de l'image donnée, le mode du contact intermittent est comparable au mode contact, de plus, il évite mieux les problèmes d'endommagement, d'adhésion ou de faibles sensibilités propres aux modes contact ou non-contact.

Les images topographiques obtenues dans le cadre de notre étude sont réalisées en mode contact, par S. Reynaud. Parmi les limitations que présente cette technique, l'usure rapide de la pointe est sans doute la plus gênante. Le microscope AFM utilisé à Cottbus de marque « SPM SOLVER P47H » fonctionne suivant le même principe que celui de Saint Étienne.

#### 4.4. Résumé

Le tableau ci-dessus résume les avantages et les inconvénients des divers appareils de caractérisation des surfaces de notre échantillon avant et après l'irradiation (microscope optique, microscope électronique à balayage et microscope à force atomique).

	<b>Avantages</b>	<b>Inconvénients</b>
<b>Microscope Optique</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- utilisation très rapide et facile.</li> <li>- accessible à tout opérateur</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Grandissement limité (1000 fois), ne permettant pas l'observation des détails (période des LIPSS).</li> </ul>
<b>MEB</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Possibilités de mesure sur différents matériaux (conducteurs, semi-conducteurs, isolants, biologiques, ...).</li> <li>- Résolution maximale de 1 nm et un grandissement jusqu'à 300 000, permettant une observation des détails.</li> <li>- mesure de la période LIPSS</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Mise sous vide des échantillons.</li> <li>- Il faut s'assurer que l'échantillon soit de nature à supporter le bombardement électronique.</li> <li>- Besoin d'un opérateur bien formé.</li> </ul>
<b>AFM</b>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Résolution nanométrique en amplitude.</li> <li>- Possibilités de mesure sur différents matériaux (conducteurs, semi-conducteurs, isolants, biologiques, ...).</li> <li>- une grande résolution allant jusqu'à 1Å en Z.</li> <li>- mesure de la période et l'amplitude LIPSS</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Champ réduit dans la pratique (100 µm x 100 µm).</li> <li>- Temps de mesure relativement long (10 à 30 minutes).</li> <li>- Usure rapide de la pointe</li> <li>- Besoin d'un opérateur bien formé.</li> </ul>

Tableau 2.5 : Récapitulatif présentant les différents avantages et inconvénients des différentes techniques utilisées (Microscope optique, MEB et AFM).

## **5. Formation de LIPSS sur un échantillon de Tungstène : effet de la fluence laser**

Dans cette partie nous examinons l'effet de la fluence laser sur la formation des LIPSS. Cette étude présente les résultats expérimentaux de l'irradiation d'un échantillon de Tungstène avec différentes fluences laser. Comme démontré dans le chapitre 1, la formation des LIPSS dépend de la fluence laser. Dans leur article, Yasumaru et al [YMK05] montrent une forte corrélation entre la période des LIPSS et la fluence laser. Ainsi, on constate une augmentation de la période des LIPSS avec l'augmentation de la fluence près du seuil d'ablation. Par ailleurs, cette observation a été confirmée dans l'article de Reif et al montrant une corrélation entre la dose d'énergie et la période des structures [RCV09]. L'utilisation d'un faisceau spatialement gaussien ne permet pas d'avoir une fluence uniforme sur la zone affectée. L'image de la figure 2.21 montre que la zone d'apparition des LIPSS dépend de la répartition spatiale du faisceau gaussien, telle que la zone encadrée en bleu qui présente la plage d'énergie d'apparition des LIPSS. Cette image présente la surface du tungstène irradiée avec une fluence moyenne de  $1.88 \text{ J/cm}^2$  et 50 impulsions. Superposé à l'image nous présentons le profil de la forme spatiale du faisceau gaussien avec une taille de waist de  $22.5 \text{ }\mu\text{m}$ , tel que, le rayon waist représente la largeur du faisceau laser à  $1/e$ . Nous avons choisi le tungstène dans ce travail, due à une grande possibilité d'obtenir des LIPSS. Elles sont nettes avec un contraste élevé, qui peut être lié à sa grande valeur de la force du couplage électron-phonon (comme nous le verrons dans le chapitre 4).

## Chapitre II.

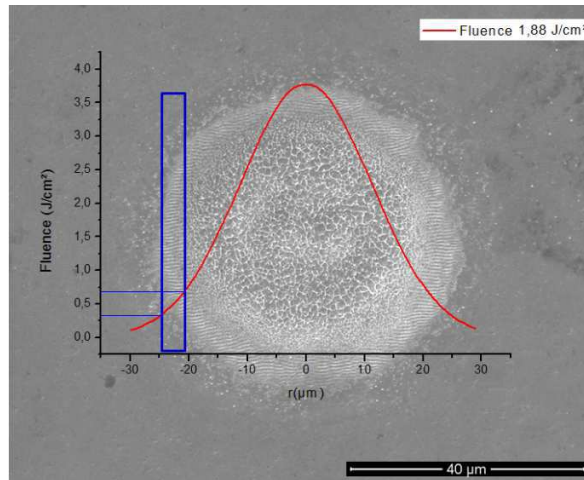


Figure 2.21 : Influence de la forme spatiale du faisceau gaussien sur la zone d'apparition des LIPSS, l'image présente un échantillon de tungstène irradié avec une fluence de 1.88 J/cm<sup>2</sup> et 50 impulsions.

La plage de fluence sur laquelle les LIPSS sont observées sur le tungstène est limitée : entre 0.30 et 0.70 J/cm<sup>2</sup> avec 50 impulsions, cette plage se trouve au bord de la tache irradiée sur le tungstène, ainsi aucune LIPSS au milieu de la tache irradiée n'a été observée, due à une fluence très importante, suite à la forme gaussienne du faisceau laser. Les images MEB de la figure 2.22, montrent l'influence de la fluence laser sur l'apparition des LIPSS dans la gamme de fluence allant de 0.06 à 1.88 J/cm<sup>2</sup> avec les mêmes conditions expérimentales et un nombre d'impulsions fixe (50 impulsions). Pour des fluences trop faibles, il semblerait qu'aucune modification ne soit induite (Figure 2.22 (a)), tandis qu'à partir d'un certain seuil, des structures périodiques commencent à apparaître après une accumulation de 50 impulsions (Figure 2.22 (b)).

Chapitre II.

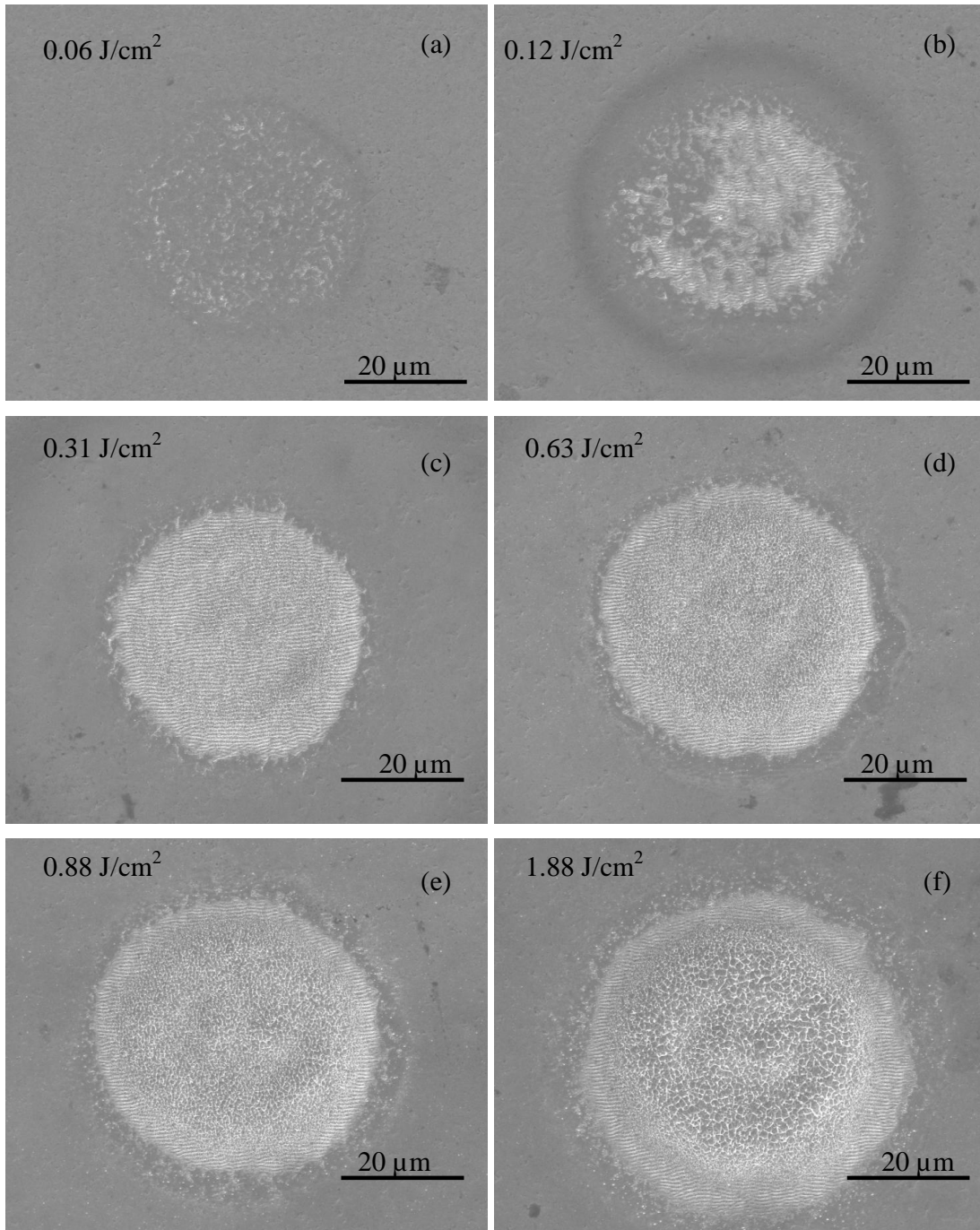


Figure 2.22 : Influence de la fluence sur l'apparition des LIPSS sur le tungstène avec 50 impulsions pour une gamme de fluence allant de 0.06 à 1.88 J/cm<sup>2</sup>.

Cependant, pour des fluences trop importantes, l'irradiation laser provoque une ablation. La zone d'une forte ablation ne possède pas de caractéristiques périodiques où la fluence est très importante (centre de la tache irradiée Figure 2.22 (f)). Mais des LIPSS

## Chapitre II.

apparaissent au bord de la tache correspondant à une plus faible fluence, cela est dû à la répartition d'énergie du faisceau gaussien (Figure 2.21). Nous rapportons les résultats de la figure 2.22 sur le graphe ci-dessous (Figure 2.23), la densité des LIPSS a été présentée en fonction de la fluence qui varie entre  $0.06 \text{ J/cm}^2$  et  $1.88 \text{ J/cm}^2$ . Elle a été calculée par le rapport entre la surface couverte par les LIPSS et la surface globale de l'impact laser.

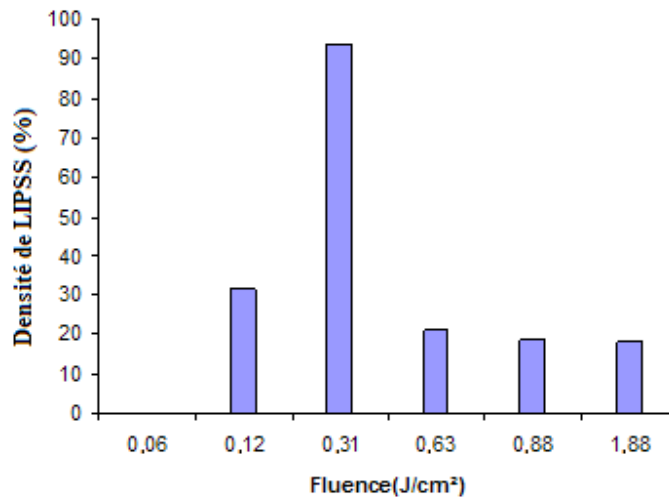


Figure 2.23 : Fluence en fonction de la densité de LIPSS, calculée sur les taches irradiées présentées sur les images de la figure 2.22.

Le graphe précédent montre une densité de LIPSS nulle pour une fluence de  $0.06 \text{ J/cm}^2$  très faible par rapport à la fluence d'ablation du matériau (seuil d'ablation, qui équivaut pour le tungstène à  $0.40 \text{ J/cm}^2$  [MMC04]). La densité augmente avec l'augmentation de la fluence jusqu'à atteindre un maximum. Elle diminue cependant pour des plages de fluence très importantes car les LIPSS sont situées juste au bord de la tache irradiée à cause d'une forte ablation des matériaux dans la zone centrale. Dans le cas du tungstène, le maximum de la densité des LIPSS a été observé pour une fluence de  $0.31 \text{ J/cm}^2$  qui est considérée comme la fluence la plus adaptée à l'observation des LIPSS sur la surface du tungstène, après une accumulation de 50 impulsions. La fluence nécessaire pour une apparition claire des LIPSS dépend fortement du type du matériau, En effet, plusieurs auteurs situent la gamme d'apparition des LIPSS en dessous du seuil d'ablation [CKR04, VG06]. Pour ce raison, et avant chaque expérience, nous chercherons à déterminer pour chaque matériau la fluence nécessaire et la plus adaptée pour l'apparition des LIPSS.



## **6. Conclusion**

Dans ce chapitre, nous avons vu la description détaillée des dispositifs expérimentaux utilisés pour mener cette étude dans les deux laboratoires : Laboratoire Hubert Curien à Saint Étienne et Laboratoire LS ExperimentalphysikII à Cottbus. Nous avons présenté les composantes de notre système laser femtoseconde et son mode de fonctionnement. Nous avons également exposé les différentes méthodes de mise en forme temporelle des impulsions femtoseconde et leur techniques de caractérisation (auto et cross corrélation).

En outre, nous avons présenté notre méthode d'irradiation des échantillons ainsi que les réglages préliminaires de notre dispositif expérimental (réglages du plan image). Ensuite, nous avons décrit les dispositifs expérimentaux utilisés dans le cadre des techniques de caractérisation de nos résultats.

Une illustration pratique de LIPSS formées à la surface d'un échantillon de tungstène a également été présentée.

Dans les chapitres suivants nous présenterons les résultats relatifs à la formation des LIPSS, obtenus dans le cadre de cette thèse.

### ***Chapitre III.***

#### ***« Rôle de l'excitation du plasmon de surface sur la formation des LIPSS »***

Résumé : Dans ce chapitre, nous étudions le rôle des plasmons de surface dans le couplage laser-matière. Pour ce faire, nous avons réalisé une expérience permettant d'exciter les plasmons de surface et d'examiner leur influence sur la formation des LIPSS.

## **1. Introduction**

Dans le chapitre I nous avons détaillé l'importance des plasmons de surface sur le couplage laser matière, ainsi le rôle d'excitation des plasmons sur la formation des LIPSS. Dans ce présent chapitre nous allons démontrer expérimentalement le rôle des plasmons sur la formation des LIPSS. Ainsi, nous avons décrit dans le chapitre II, le dispositif expérimental comprenant un laser délivrant des impulsions femtoseconde, un dispositif pour la mise en forme temporelle des impulsions et enfin les différentes techniques de caractérisation utilisées dans le cadre de cette étude. Dans ce chapitre, nous présenterons la démarche suivie ainsi que la description détaillée de notre système expérimental qui nous a permis de mettre en évidence l'influence de l'excitation des plasmons de surface sur la formation des LIPSS. Nous nous intéresserons également aux conditions nécessaires à l'excitation des plasmons de surface et nous examinerons enfin les résultats obtenus.

## **2. Démarche expérimentale suivie**

Dans cette partie nous allons montrer le rôle de l'excitation des plasmons de surface sur la formation des LIPSS. Les plasmons de surface sont des ondes électromagnétiques associées à une oscillation collective des électrons du plasma d'électrons libres à la surface d'un métal. C'est une onde longitudinale, elle provient du couplage entre les photons incidents arrivant sur une surface métallique. Cette résonance de plasmon est obtenue uniquement pour une polarisation TM comme nous l'avons détaillé dans le chapitre I. Nous indiquons dans les paragraphes suivants les démarches expérimentales suivies pour aboutir à l'excitation des plasmons de surface : réalisation de réseaux de différentes périodes sur la surface de l'échantillon , ceci étant une condition nécessaire à l'excitation des plasmons comme cela a été mentionné dans le chapitre I. Nous discuterons par la suite de l'importance du couplage laser-matière dans la formation des LIPSS. Enfin, cette démarche expérimentale sera suivie d'une analyse approfondie des résultats obtenus. Ces travaux ont été publiés dans la référence [GCP11].

### **2.1. Préparation d'échantillons**

#### **a) Méthode de fabrication des réseaux de diffraction**

Nous avons développé dans notre laboratoire un ensemble de procédures et techniques lithographiques réalisées par Svetlen TONCHEV permettant de fabriquer des réseaux de différentes périodes dans la gamme de 440 à 800 nm et de profondeur allant de 10 nm à 500 nm. Dans notre expérience, nous avons donc choisi une épaisseur de 10 nm de manière à ne pas changer la constante diélectrique correspondant à une surface lisse.

Nous avons utilisé une gravure chimique pour obtenir une si faible épaisseur sur des substrats de nickel. Un banc d'exposition d'interférences de type Mach-Zehnder a été utilisé pour créer des réseaux de différentes périodes sur plusieurs plaques de nickel recouvertes d'une couche de résine photosensible (Shipley SPR505A). La procédure expérimentale est résumée sur la figure 3.1. La couche de résine est déposée sur un

### Chapitre III.

substrat de Ni par la technique du « Spin Coating ». La présence d'un substrat métallique de haute réflexion provoque dans la couche de résine photosensible la formation d'une onde stationnaire avec un nœud de champ électrique tout près de la surface. Cela implique que les franges d'interférence après le développement de la résine photosensible deviennent des sillons non-complètement ouverts jusqu'à la surface métallique, empêchant la gravure chimique de la surface. Il est donc nécessaire d'augmenter la dose d'exposition pour que les sillons soient bien ouverts jusqu'au fond sans toutefois donner lieu à un ventre de champ dans la couche de résine. C'est la raison pour laquelle on a choisi une épaisseur de résine plutôt faible : 140 nm d'épaisseur. L'échantillon ainsi revêtu de résine photosensible est donc placé dans un interférogamme classique de type Mach-Zehnder alimenté par un laser He-Cd s-polarisé à 30 mW, émettant à 442 nm. Le transfert physique du réseau de la couche de résine dans la surface de nickel a été réalisé par gravure humide à l'aide d'une solution acide. Pour pouvoir amorcer la gravure, le Nickel exige un acide plus un oxydant. Ce liquide contient de l'acide nitrique dilué ( $\text{HNO}_3$ ). Une dilution de 10:1 donne une vitesse de gravure de 1 nm/sec. Une attention particulière a été accordée à la vérification de l'absence de toute contamination de la surface du nickel due à la préparation des échantillons. Généralement l'ensemble de l'opération se déroule en salle blanche afin d'éviter au maximum toute contamination des surfaces. Les périodes des réseaux vont de  $\Lambda_G = 440$  nm à 800 nm tous les 10 nm. La figure 3.2 représente une photo (sous éclairage naturel) de l'ensemble des échantillons (figure 3.2 (a)) et une image MEB d'un réseau (Figure 3.2 (b)).

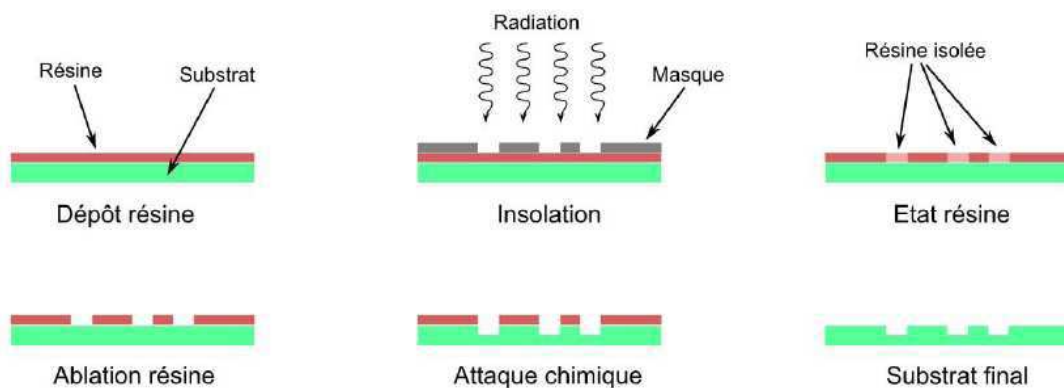


Figure 3.1. Principe de la photolithographie.

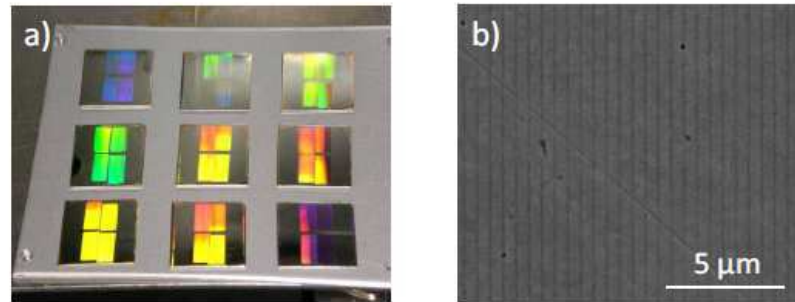


Figure 3.2. a) Représente une photo (sous éclairage naturel) de l'ensemble des échantillons et b) image MEB d'un réseau avec une période de  $\Lambda_G = 560$  nm.

### b) Choix de la profondeur du réseau

Nous choisissons dans le cadre de cette application la profondeur des réseaux à 10 nm. Cette épaisseur n'induit pas de changements dans les propriétés diélectriques [HZC09, GCP11]. Afin de nous assurer que le réseau de profondeur 10 nm n'induit pas de changements dans les propriétés diélectriques, nous avons effectué un calcul de l'efficacité de la réflexion d'ordre zéro par des réseaux à différentes épaisseurs réalisé par O. PARRIAUX. Ce calcul, présenté dans la figure 3.3 ci-dessous est effectué pour une incidence en polarisation TM et une longueur d'onde de 800 nm sur une surface de Ni, par la méthode «RCWA : Rigorous Coupled-Wave Analysis» (code Lyndin, [www.MCgrating.com](http://www.MCgrating.com)). Cette figure montre que les courbes de l'efficacité de la réflexion sont à peu près constantes et atteignent la valeur attendue de l'excitation du plasmon (790 nm) pour des faibles profondeurs de réseaux (5-15 nm) concordant ainsi avec les résultats publiés par M. Huang et al [HZC09].

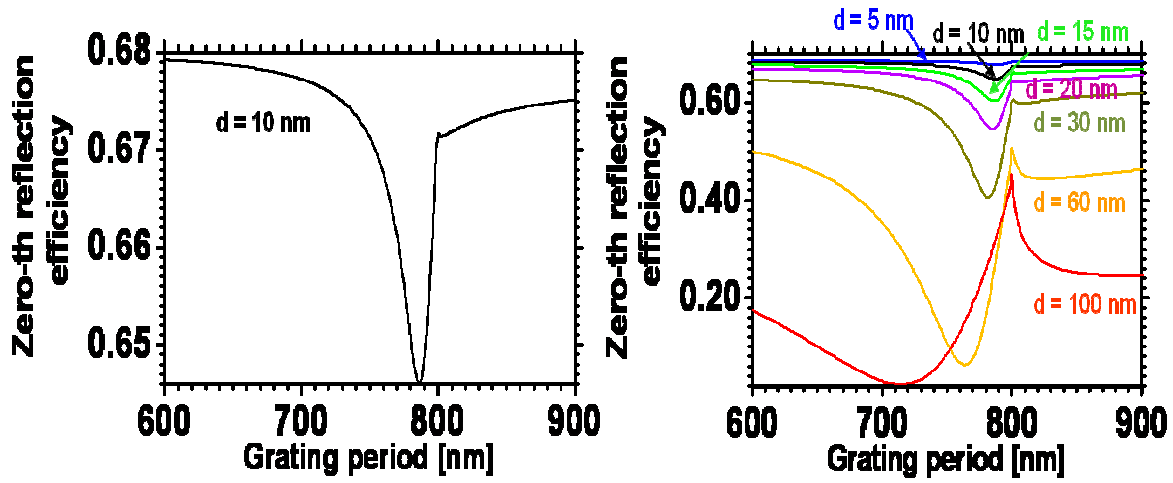


Figure 3.3. Calcul de l'efficacité de la réflexion d'ordre zéro par des réseaux à différentes épaisseurs.

## 2.2. Condition d'irradiation laser

Le dispositif expérimental utilisé dans notre expérience a déjà été présenté dans le chapitre précédent (figure 2.15). Le faisceau laser à la sortie de l'amplificateur possède une durée d'impulsion de 150 fs de largeur à mi-hauteur (FWHM) avec un taux de répétition de 1 KHz et de longueur d'onde 800 nm. Le faisceau laser est focalisé normalement, à l'aide d'une lentille achromatique de 50.8 mm de focale, sur l'échantillon qui est monté à la verticale sur une platine de translation qu'on peut déplacer dans les différentes directions XYZ. L'irradiation des échantillons est réalisée à pression atmosphérique dans le plan image d'un diaphragme de diamètre de  $\phi = 2.8$  mm, produisant un spot laser à la surface du matériau d'un rayon d'environ  $27.55 \mu\text{m}$  (voir la méthode présentée dans le chapitre précédent). Les expériences présentées dans cette partie ont été réalisées en appliquant une irradiation par une seule impulsion afin d'éviter tous les phénomènes d'accumulation qui pourraient modifier la résonance plasmon [ZMW07, HQ10]. Par ailleurs, la polarisation jouant un rôle très important dans l'excitation des plasmons, cette excitation des plasmons de surface n'aura lieu seulement que pour une polarisation TM. La figure 3.4 présente un schéma de l'irradiation de notre échantillon ainsi que les deux polarisations avec une incidence normale, (a) : TE est le

### Chapitre III.

champ électrique parallèle au réseau et (b) : TM est le champ électrique perpendiculaire au réseau. Ainsi  $\Lambda$  et  $\sigma$  sont respectivement la période et la profondeur du réseau.

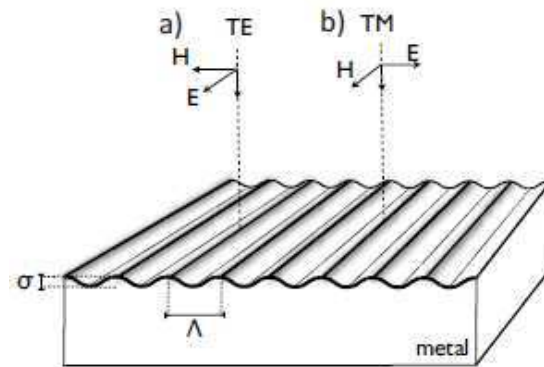


Figure 3.4 : Irradiation du réseau sous incidence normale à une fluence de  $1.42 \text{ J/cm}^2$  avec une seule impulsion laser femtoseconde. (a) polarisation TE : le champ électrique est parallèle au réseau. (b) polarisation TM : le champ électrique est perpendiculaire au réseau.  $\Lambda$  et  $\sigma$  sont respectivement la période et l'épaisseur du réseau.

### 3. Rôle du couplage laser-matière sur la formation des LIPSS

Les premières observations montrent que l'irradiation d'un même échantillon de nickel sans réseau et dans les conditions d'irradiation précisées ci-avant ne conduit pas à la formation de LIPSS (fine LIPSS). Dans les mêmes conditions expérimentales, nous avons réalisé une série d'irradiations sur les différents échantillons de Nickel avec des réseaux de périodes allant de  $\Lambda_G = 440 \text{ nm}$  à  $800 \text{ nm}$ , pour les deux polarisations TE et TM à une fluence laser de  $1.42 \text{ J/cm}^2$  et pour une seule impulsion laser. La figure 3.5 montre les images MEB des échantillons avec différentes périodes de réseaux :  $710 \text{ nm}$ ,  $760 \text{ nm}$  et  $790 \text{ nm}$ , le faisceau laser est polarisé TM.



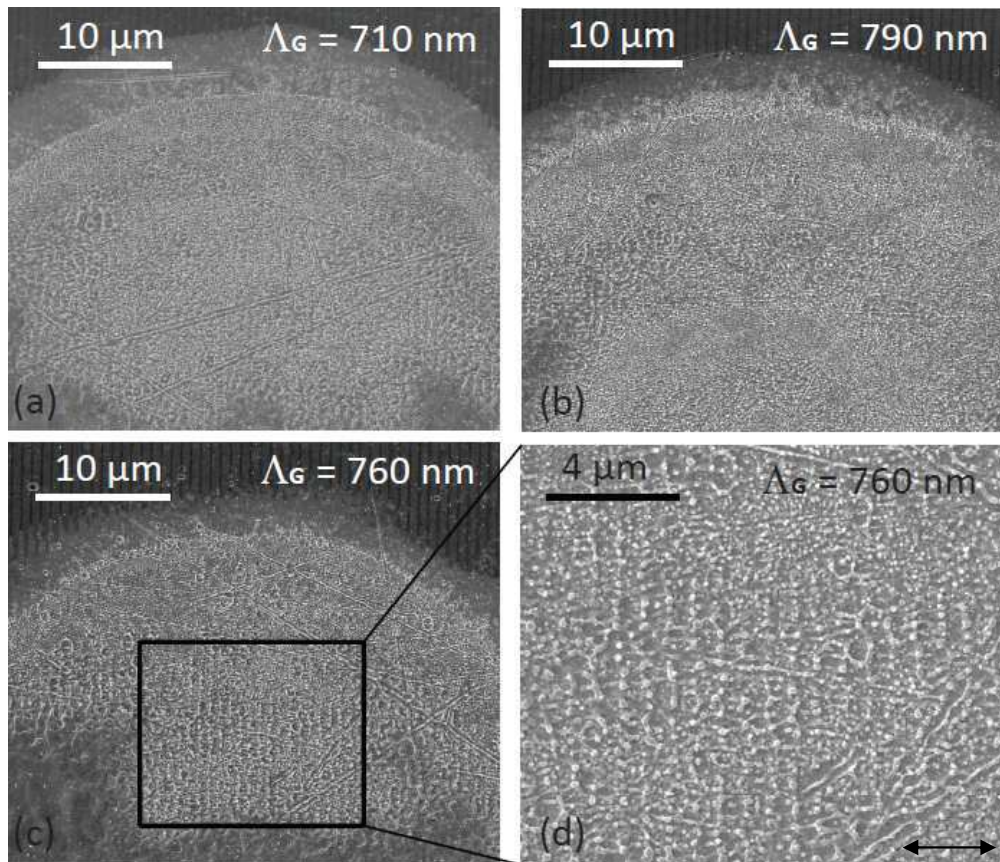


Figure 3.5 : Images MEB des échantillons avec les différentes périodes de réseau de 710 nm (a), 790 nm (b) et 760 nm (c, d) irradiés avec une seule impulsion laser femtoseconde polarisée TM, et une fluence de  $1.42 \text{ J/cm}^2$ . La polarisation du laser est représentée schématiquement par les doubles flèches.

Les images (a) et (b) de la figure 3.5 ci-dessus montrent des échantillons de Nickel pré-structurés avec des réseaux ayant des périodes différentes de 710 et 790 nm. Aucune structure LIPSS perpendiculaire à la polarisation n'est observée, que ce soit sur l'un ou l'autre des échantillons. Dans le cas des deux polarisations (TM ou TE), nous n'avons observé aucune structure fines LIPSS sur les différents réseaux à différentes périodes excepté sur le réseau de période de 760 nm. Les images (c) et (d) de cette même figure 3.5 montrent l'échantillon de nickel avec le réseau de période 760 nm et son grandissement. L'agrandissement de la zone encadrée montre clairement la formation des LIPSS de type fine LIPSS pour des périodes bien définies.

### Chapitre III.

Cela correspond à une résonance du plasmon de surface avec une longueur d'onde laser femtoseconde de 800 nm. La période de ces fines LIPSS est proche de 760 nm. Ceci est observé uniquement avec la polarisation TM, ce qui démontre clairement le rôle important joué par l'excitation des plasmons de surface sur la formation des fines LIPSS. Pour aller au-delà de ces premiers résultats qualitatifs, on a procédé à un examen systématique de toutes les périodes du réseau. Une quantification a été faite par la mesure de la densité des LIPSS sur la surface de l'impact, qui consiste à calculer le rapport entre la surface couverte par les LIPSS et la surface globale de l'impact laser.

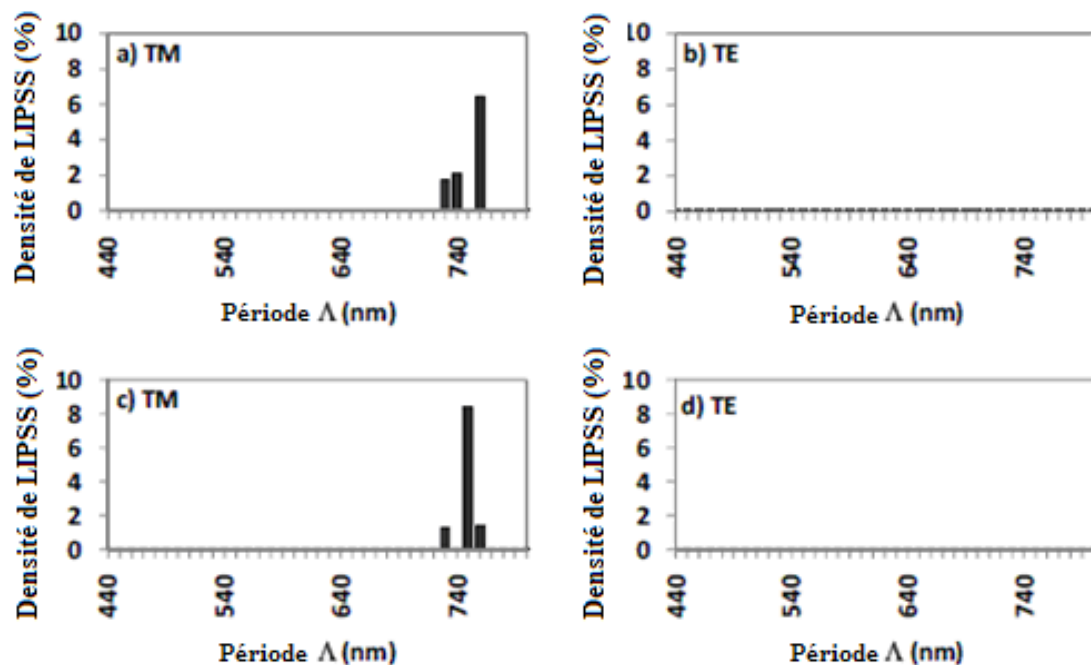


Figure 3.6. Densité des LIPSS en fonction de la période du réseau sur un substrat de nickel, avec une polarisation TM (a, c) et une polarisation TE (b, d). La fluence du laser est de  $1.42 \text{ J} / \text{cm}^2$  (a, b) et  $0.97 \text{ J} / \text{cm}^2$  (c, d). La densité des LIPSS est mesurée par le rapport entre la surface couverte par les structures fines LIPSS et la surface totale de l'impact laser.

Ces résultats sont reportés sur la Figure 3.6 pour deux fluences différentes de  $1.42 \text{ J}/\text{cm}^2$  (a, b sur la Figure 3.6) et de  $0.97 \text{ J}/\text{cm}^2$  (c, d sur la Figure 3.6) et pour différentes polarisations TE et TM. Pour une polarisation TE, la densité des LIPSS est nulle quelle que soit la période du réseau sur la surface du nickel ou la fluence utilisée (Figure 3.6 (b, d)). Pour la polarisation TM, en revanche, une forte augmentation de la densité des

## Chapitre III.

LIPSS est observée pour une période proche de 760 nm, avec des valeurs nulles en dessous de 720 nm et au-dessus de 770 nm (a et c sur la Figure 3.6). Cette résonance forte sur la période observée sera discutée dans la section suivante. Ces phénomènes se produisent non seulement pour cette valeur de la fluence ( $1.42 \text{ J/cm}^2$ ), mais aussi pour une plus faible fluence laser à  $0.97 \text{ J/cm}^2$ , comme le montre la Figure 3.6 (c). Ce comportement observé à différentes énergies, atteste que dans une gamme d'énergie bien définie et sous exposition laser par une seule impulsion, l'excitation des plasmons de surface joue un rôle précurseur dans la formation des LIPSS sous irradiation laser femtoseconde.

## 4. Analyse des Résultats

### 4.1. Calcul de la longueur d'onde du plasmon pour Ni

Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre I, la forme la plus simple d'un plasmon de surface est une excitation électromagnétique qui peut exister à l'interface de deux milieux ayant des constantes diélectriques de signes opposés, par exemple dans notre cas le nickel et l'air. La technique utilisée dans notre cas pour l'excitation des plasmons de surface est le couplage de faisceau incident avec une modulation périodique de la surface du métal (réseau) [RAC68]. Du fait de la présence d'une structuration périodique sur la surface métallique, l'onde diffractée par le réseau est couplée aux ondes de plasmons de surface. L'excitation d'une onde plasmonique à la surface du matériau par une onde incidente peut conduire à un dépôt d'énergie modulé. Pour tenter d'apporter une explication au comportement observé au niveau de ce couplage et de la résonance aux périodes 750 nm et 760 nm du réseau, nous allons décrire ci-dessous les effets de l'irradiation d'impulsion laser ultra-courte sur les propriétés optiques conduisant à un changement de la résonance plasmonique de surface attendue.

### Chapitre III.

Pour le calcul de la longueur d'onde du plasmon, on applique des conditions limites appropriées pour les champs résultant à l'interface diélectrique/métal. L'expression familière du vecteur d'onde du plasmon, comme nous l'avons présenté dans le chapitre I est :

$$k_{sp} = k'_{sp} + ik''_{sp} = \frac{\omega}{c} \left( \frac{\epsilon_d \epsilon_m}{\epsilon_d + \epsilon_m} \right)^{1/2} \quad (3.1)$$

Où  $\epsilon_d$  est la permittivité du milieu diélectrique et  $\epsilon_m = \epsilon'_m + i\epsilon''_m$  la constante diélectrique complexe du métal. La longueur d'onde du plasmon  $\lambda_{SP}$  correspond à la partie réelle de vecteur d'onde du plasmon  $k_{SP}$  et peut être écrite sous la forme suivante :

$$\lambda_{sp} = \frac{2\pi}{k'_{sp}} = \lambda \Re \left( \frac{\epsilon_d + \epsilon_m}{\epsilon_d \epsilon_m} \right)^{1/2} \quad (3.2)$$

Le calcul de la longueur d'onde réalisé par J.P. Colombier à partir des données des références [Gra72, Pal85], donne pour  $\lambda = 800$  nm,  $\epsilon'_m = -13$  et  $\epsilon''_m = 21.7$ , une longueur d'onde de plasmon de surface  $\lambda_{SP} = 792$  nm. On peut donc considérer que la période de résonance du plasmon attendue dans notre étude expérimentale serait de 792 nm.

## 4.2. Modification des propriétés optiques par une excitation laser ultracourte

Les résultats expérimentaux obtenus dans la section précédente (3) concernant la résonance du plasmon (autour de 750-760 nm) sont différents de ceux attendus (792 nm). Dans le cas d'un métal de transition comme le nickel, le passage de la résonance de 792 nm à 750-760 nm peut s'expliquer par un changement complexe de la densité électronique modifiant les transitions possibles entre les bandes d et s, en raison de l'excitation laser ultracourte. Du point de vue de la modélisation Drude-Lorentz, l'équation (3.2) de paragraphe 4.1 exige une correction au niveau de la fonction diélectrique  $\epsilon_m$  due à l'excitation ultra-courte du nickel, cette correction peut faire évoluer cette résonance plasmonique de 792 nm à 750-760 nm [GCP11]. Par conséquent,

### Chapitre III.

la constante diélectrique complexe se compose en deux parties, une partie correspondant à une excitation intrabande décrite par le modèle de Drude, et l'autre partie correspondant à des absorptions résonantes interbandes, basée sur le modèle de Lorentz :  $\mathcal{E}_m = \mathcal{E}_D + \mathcal{E}_{IB}$ . A une fréquence donnée, la longueur d'onde du plasmon de surface peut être modifiée par la variation de la constante diélectrique  $\mathcal{E}$ . Ceci nécessite d'évaluer l'effet produit par l'excitation du matériau. Dans le cas de notre longueur d'onde laser, les modifications dominantes des propriétés optiques résultent de la modification des états électroniques. Ainsi, pour le nickel, le terme  $\mathcal{E}_{IB}$  interbande est dominé par des transitions de la bande d à la surface de Fermi. L'énergie laser déposée dans un gaz d'électrons induit un écartement de la distribution des électrons autour de l'énergie de Fermi, donc affecte les transitions intrabande et interbande survenant dans le système électronique. Les transitions intrabande et interbande se produisant dans le système électronique sont alors modifiées.

La fréquence plasma dépend de la fonction de la constante diélectrique complexe  $\mathcal{E}_m$  décrite par le modèle de Drude-Lorentz [RDE98].

$$\mathcal{E}_m = \mathcal{E}_r + i\mathcal{E}_i = \mathcal{E}_D + \mathcal{E}_{IB} = \left[ 1 - \frac{f_0 \omega_p^2}{\omega(\omega - i\gamma)} \right]_D + \left[ \sum_{j=1}^k \frac{f_j \Omega_p^2}{(\omega_j^2 - \omega^2) + i\omega\Gamma_j} \right]_D \quad (3.3)$$

Dans la partie correspondant au modèle de Drude (première terme de l'équation 3.3), les principaux paramètres (la fréquence du plasma  $\omega_p$  et le taux de diffusion des électrons libres  $\gamma$ ) décrivent la dynamique des porteurs libres dans un matériau lors des transitions intrabandes. Le mouvement des porteurs de charge localisés est décrit par le deuxième terme de l'équation 3.3, les oscillateurs harmoniques de Lorentz, ainsi  $f_j$ ,  $\omega_j$ , et  $\Gamma_j$  sont respectivement la force d'oscillateur, la fréquence centrale et le taux de diffusion des électrons excités par transitions interbandes indexées j. Les paramètres du calcul des fonctions diélectriques de l'intrabande et de l'interbande pour le Ni à 300 K,  $f_0$ ,  $f_j$ ,  $\gamma$  et  $\Gamma_j$ , ont été extraits des données ajustées par Rakic et al [RDE98]. Selon ces données, les

### Chapitre III.

fréquences plasma sont :  $\omega_p = \Omega_p = \omega_p^0 = 15.92 \text{ eV}$ , correspondant à deux électrons libres par atome. Dans ce calcul, les deux paramètres  $\mathcal{E}_r$  et  $\mathcal{E}_i$  varient, modifiant ainsi la longueur d'onde du plasmon de surface. Une représentation dans le plan  $(\mathcal{E}_r, \mathcal{E}_i)$  est donnée sous forme de cartographie couleur sur la Figure 3.7 (a) [GCP11]. La figure 3.7 (b) montre la dépendance de la longueur d'onde du plasmon  $\lambda_{SP}$  avec les fréquences plasma liées au changement de la densité d'électrons contribuant aux transitions intrabandes et l'interbandes. Les paramètres sont calculés en fonction de  $\omega_p$ , mais des arguments qualitatifs similaires pourraient être déduits à partir de l'évolution relative des forces d'oscillateur  $f_0$  et  $f_j$ .

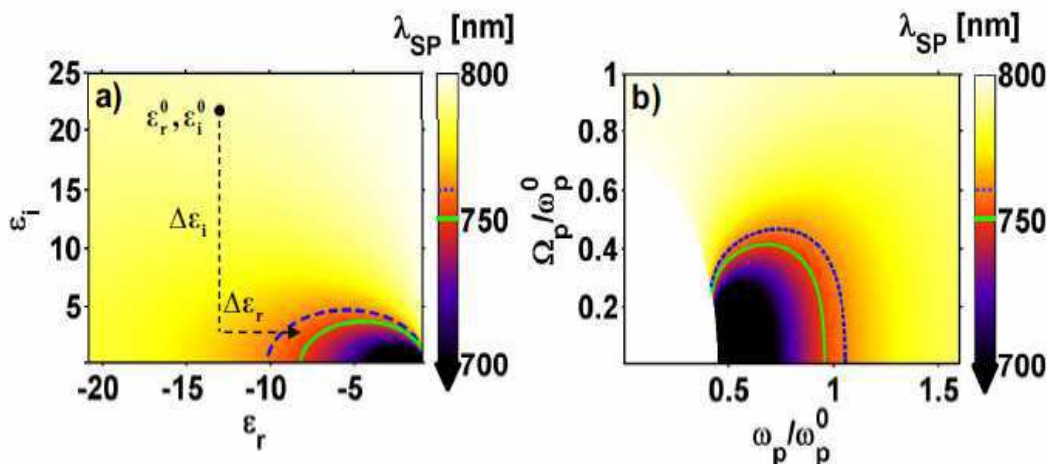


Figure 3.7 : (a) Longueur d'onde plasmon calculée dans le plan complexe de permittivité diélectrique.  $\lambda_{SP} = 750 \text{ nm}$  est représentée par la courbe en vert et  $\lambda_{SP} = 760 \text{ nm}$  par la courbe en bleue pointillée. La valeur attendue est (792 nm) indiquée en noir. L'ensemble des solutions possibles est tracé en fonction des fréquences plasma utilisées dans le modèle de Drude-Lorentz (b).

Il a déjà été supposé que la longueur d'onde du plasmon de surface et la période des LIPSS diminuent avec la densité électronique dans le cas du silicium [HQ10, BRK11]. Pour un métal de transition comme le nickel, le passage de la résonance de 792 nm à 750-760 nm peut résulter d'un changement complexe de la densité électronique. De fait, les transitions possibles entre les bandes d et s sont modifiées en raison de l'excitation

### Chapitre III.

ultracourte laser, comme indiqué sur la figure 3.7 (b).  $\lambda_{SP} = 760$  nm est la solution représentée par la courbe supérieure pointillée en bleu sur la Figure 3.7 (b) et  $\lambda_{SP} = 750$  nm est la solution représentée par la courbe inférieure en vert sur la même figure. Ces deux courbes entourent les solutions possibles qui sont accessibles pour une contribution de la bande d inférieure à celle correspondant au cas de la température ambiante. Le seuil en énergie des transitions interbandes n'est pas clair dans le cas du Ni. En effet, les bandes d se chevauchent et ont des énergies d'électrons supérieures à l'énergie de Fermi, comme cela est présenté dans les calculs de structure de bandes électroniques de Lin et al [LZ08]. Le chevauchement d'une forte densité d'états de la bande d avec l'énergie de Fermi garantit que les électrons de la bande 3d peuvent être facilement excités vers la bande 4s. En raison de l'énergie des photons qui sont supérieure au seuil des transitions interbandes, les électrons des bandes d sont promus vers des états vides de la bande s ou p près du niveau de Fermi par des transitions interbandes directes [HKN07].

Comme la température des électrons du système augmente, des états vides seront disponibles en-dessous du niveau de Fermi (Fermi Smearing). La bande 4s ayant une densité d'états plus petite que celle du niveau de Fermi, ceci conduit à un changement de potentiel chimique aux énergies plus élevées et à une réduction de la contribution des électrons de la bande d [LZ08]. La contribution de ces électrons disponibles pour subir une transition diminue, entraînant une diminution de la fréquence de plasma  $\Omega_p$ . En conséquence, la longueur d'onde du plasmon de surface résultante se réduit, ce qui s'accorde avec les mesures présentées sur la figure 3. 6. Cette analyse nous permet d'identifier la gamme de résonance plasmonique de surface pouvant être effectivement atteinte après une excitation ultra-courte. La diminution de la période spatiale pour les structures périodiques de surface obtenues expérimentalement pourrait ainsi être liée à la diminution de la longueur d'onde du plasmon de surface  $\lambda_{SP}$ . Cela advient suite à une diminution de la fréquence du plasma dans le solide.

## 5. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté une étude de la formation des LIPSS générées par l'irradiation d'un matériau avec des impulsions laser femtoseconde. Dans ce cadre nous avons réalisé une irradiation avec une seule impulsion et deux polarisations différentes TM et TE sur des réseaux présentant une large gamme de périodes allant de 440 à 800 nm. Sur la base de cette procédure expérimentale, nous avons démontré que les plasmons de surface induits sous une excitation laser femtoseconde conduisent à la génération de fines LIPSS sur la surface de nickel. Nos résultats révèlent que les fines LIPSS n'apparaissent que pour une période de réseau bien définie située autour de 750-760 nm, cela laisse penser que le couplage avec les plasmons de surface est responsable de la formation des ondulations. Les calculs théoriques montrent que la période du réseau attendue est différente de celle qui est calculée par la fonction de la constante diélectrique à  $\lambda = 800$  nm. Le modèle de Drude-Lorentz a été appliqué en supposant que la constante diélectrique du nickel est susceptible de changer en raison de l'excitation laser ultra-courte.



## *Chapitre IV*

### *« Influence du couplage électron phonon sur la formation des LIPSS »*

Résumé : Dans ce chapitre, nous avons étudié l'influence du couplage électron-phonon sur la formation des LIPSS. Afin de rendre compte de cette influence, nous avons examiné quatre différents types de métaux présentant différentes constantes de couplage électron-phonon sous une irradiation laser femtoseconde. En somme, nous avons obtenu une corrélation entre la force de couplage électron phonon et l'amplitude des LIPSS.

### **1. Introduction**

Nous avons abordé dans le chapitre précédent un mécanisme que nous supposons très important dans la formation des LIPSS. En effet, nous avons constaté que l'excitation des plasmons de surface par un laser femtoseconde conduit à un dépôt périodique d'énergie sur la surface du matériau. Cela peut amener à la génération de structures fines LIPSS sur la surface de nickel. Suite à un dépôt périodique d'énergie à la surface d'un matériau, l'équilibre thermique entre les différents systèmes (électrons-ions) se produit par un échange thermique entre les deux systèmes par l'intermédiaire du couplage électron-phonon. Faisant suite à ce résultat important présenté dans le chapitre I (section 2.2.2), nous supposons que la force de couplage électron-phonon est susceptible de jouer un rôle très important dans la formation des LIPSS. Ce coefficient de couplage électron-phonon a déjà été discuté dans le chapitre I. Pour examiner son influence sur la formation des LIPSS, nous avons utilisé quatre différents types de métaux présentant différentes constantes de couplage électron-phonon. Nous avons ainsi démontré l'existence d'une forte corrélation entre les propriétés des métaux et l'amplitude des LIPSS, autrement dit, entre la force de couplage électron-phonon et l'amplitude des LIPSS.

## **2. Rôle du couplage électron-phonon sur la formation des LIPSS**

### **2.1. Procédures expérimentales**

Dans ce travail, nous effectuons une étude comparative des structures périodiques induites par un laser femtoseconde sur deux types de métaux : des métaux de transition (Ni, W et Ru) et un métal noble (Cu). Le montage de notre expérience est présenté sur la figure 2.15 du chapitre II. Les propriétés électroniques des deux types de matériaux, telles que la conductivité thermique  $K$  et la force de couplage électron-phonon, sont indiquées dans le tableau (4.1). Le Ruthénium (Ru) a été choisi pour sa grande valeur de la force du couplage électron-phonon [BDF00]. Les autres matériaux ont été choisis en raison de leurs structures électroniques différentes et du comportement de la force de couplage électron phonon avec la température électronique  $T_e$ . La morphologie des surfaces des échantillons traités est étudiée avec un microscope électronique à balayage (MEB). Avant toute irradiation des matériaux, nous préparons notre échantillon par un polissage de la surface permettant de minimiser l'effet des défauts de surface. Le polissage a été effectué à l'aide d'une polisseuse automatique avec des disques Sic qui couvrent l'équivalent des grains de 180 à 2400 puis, sur des grilles abrasives rétinoides, en utilisant un liquide diamantées Mecaprex (6  $\mu\text{m}$  à 0.25  $\mu\text{m}$ ). Après une série d'irradiation des échantillons, nous examinons nos impacts grâce aux différentes techniques de caractérisation dont nous disposons au laboratoire (Microscope optique, Microscope à force atomique (AFM) et Microscope électronique à balayage (MEB) (présentés dans le chapitre II). Ces techniques nous ont permis d'obtenir les résultats présentés dans le paragraphe suivant.

Metals	A (%)	$\delta$ (nm)	K ( $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ )	$\gamma \times 10^{17}$ ( $\text{W}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{K}^{-1}$ ) (At $T_e=5000$ K)	$T_m$ (K)	$C_i$ ( $\times 10^6 \text{ J}\cdot\text{K}^{-1}\cdot\text{m}^{-3}$ )
Ru	61.2	16.2	117	18 (300K)	2607	2.9
W	50.4	23.3	170	4.3	3695	2.6
Ni	31.7	14.5	91	2	1728	3.8
Cu	3.7	12.6	398	2.1	1358	3.5

Tableau 4.1 : Propriétés des matériaux étudiés (Ru, W, Ni et Cu). A(%) présente l'absorption des matériaux,  $\delta$  est la profondeur de peau,  $\gamma$  est la constante du couplage électron-phonon, K est la conductivité d'équilibre,  $T_m$  la température de fusion et  $C_i$  est la capacité calorifique des ions. Les différentes données sont extraites des références [LZ08, Pal85].

## 2.2. Résultats : Influence des propriétés des matériaux sur l'amplitude des LIPSS.

Ces résultats sont publiés dans la référence [CGF11]. Des études antérieures ont montré que les processus de formation des LIPSS sur les surfaces métalliques mettent en concurrence deux processus ultra-rapides, le couplage électron-phonon et la diffusion de l'énergie des électrons chauds. Toutefois, ces travaux ont été limités aux cas des métaux nobles [WG05, WG06, HVG09]. Nous étendons ces études pour d'autres métaux de types de transition, avec en grande partie des propriétés physiques et thermodynamiques différentes (tableau 4.1).

La figure 4.1 présente les images MEB de l'irradiation des différents métaux (Ru, W, Ni et Cu) ayant des coefficients de couplage électron-phonon allant de  $2 \cdot 10^{17} \text{ Wm}^{-3}\text{K}^{-1}$  à  $18 \cdot 10^{17} \text{ Wm}^{-3}\text{K}^{-1}$  (voir tableau 4.1).

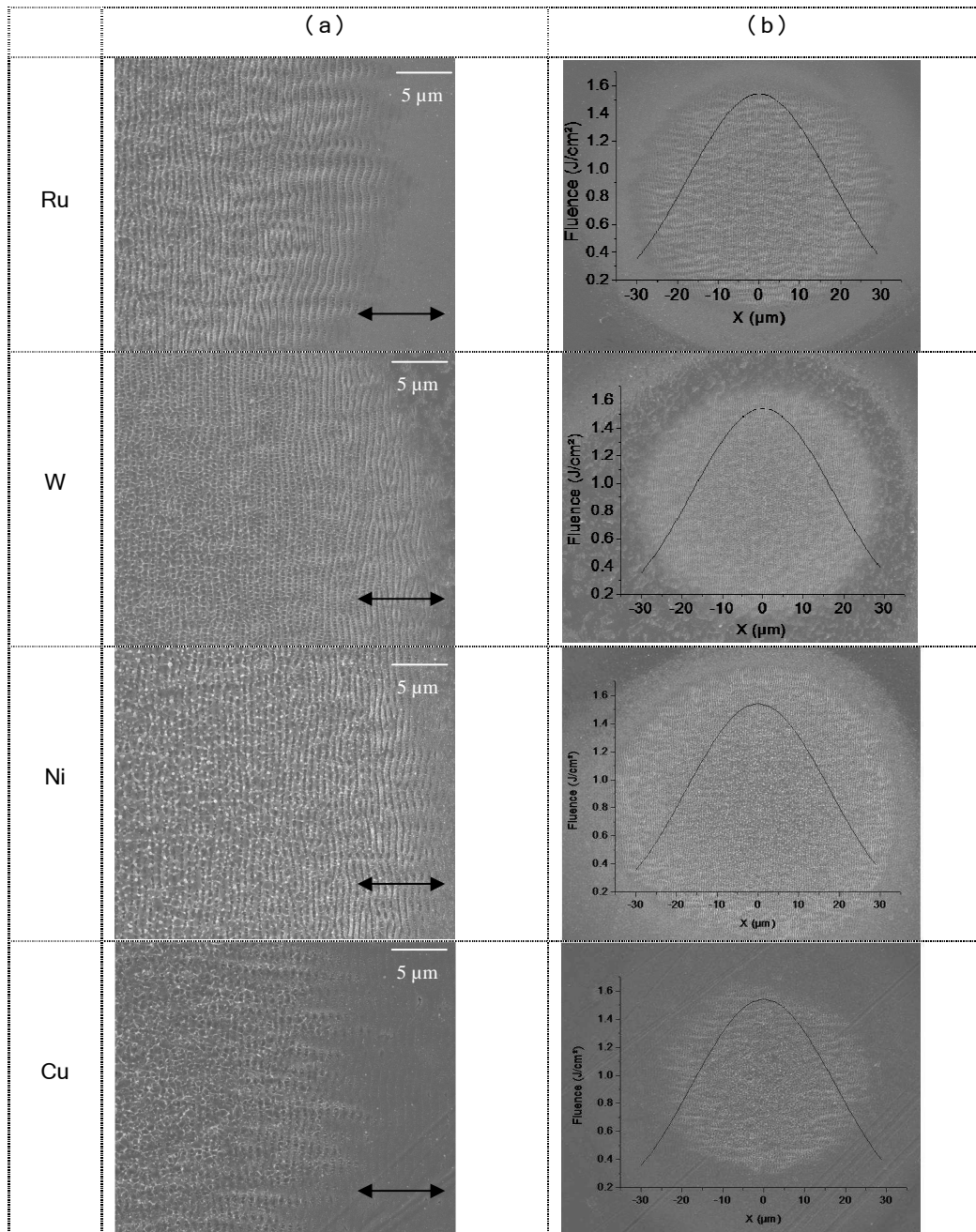


Figure 4.1 : Images MEB, pour différents métaux (Ru, W, Ni et Cu) sous les mêmes conditions expérimentales d'irradiation (fluence moyenne de  $0.5 \text{ J/cm}^2$  et 50 impulsions). (a) images MEB (b) profil gaussien de l'intensité du faisceau laser, tel que déterminé par la mesure de la taille du faisceau. La direction du champ électrique est indiquée par la double flèche.

## Chapitre IV

Dans des conditions expérimentales identiques pour tous les matériaux (fluence moyenne de  $0.5 \text{ J/cm}^2$  avec 50 impulsions), les LIPSS sont observés sur tous les matériaux comme le montre la figure 4.1 (a) pour Ru, W, Ni et Cu. Les LIPSS sont perpendiculaires au champ électrique incident (double flèche, Figure 4.1(a)). Notons que l'énergie de l'impulsion laser est nettement plus élevée dans le centre de la zone irradiée en raison du profil du faisceau gaussien (figure 4.1 (b)). La présence d'une phase liquide lors de la formation des LIPSS, est attestée par des éjections de matière de petite taille autour de la zone d'impact. Cependant, l'amplitude de LIPSS, semble dépendre des propriétés des matériaux. Des travaux antérieurs effectués sur les métaux nobles confirment cette tendance [WG05, WG06]. Nous observons une forte corrélation entre l'amplitude des LIPSS et la force du couplage électron-phonon ( $\gamma$ ) des matériaux, plus cette valeur de  $\gamma$  augmente plus l'amplitude des LIPSS est importante (Figure 4.2).

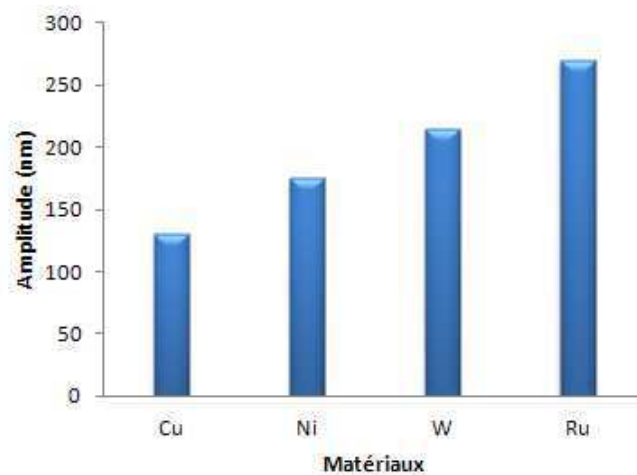


Figure 4.2. Amplitude des LIPSS de différents matériaux avec une irradiation laser d'une fluence de  $0.5 \text{ J/cm}^2$  et 50 impulsions.

La période de LIPSS, telle que déterminée par les analyses MEB et AFM (Figure 4.3) se trouve à environ 560-640 nm, cette variation pouvant être due notamment à l'évolution de la longueur d'onde du plasmon par un changement de la densité d'électrons (section 4.2 chapitre III). L'amplitude des LIPSS, mesurée à différentes valeurs de fluences locales, est rapportée sur la figure 4.4. Cette dernière confirme l'évolution attendue de la force du couplage électron-phonon avec la température comme on le verra par la suite. Les valeurs plus élevées de la fluence correspondent à un régime où l'ablation se produit, ce qui n'est pas contradictoire avec la formation des LIPSS [OHM10].

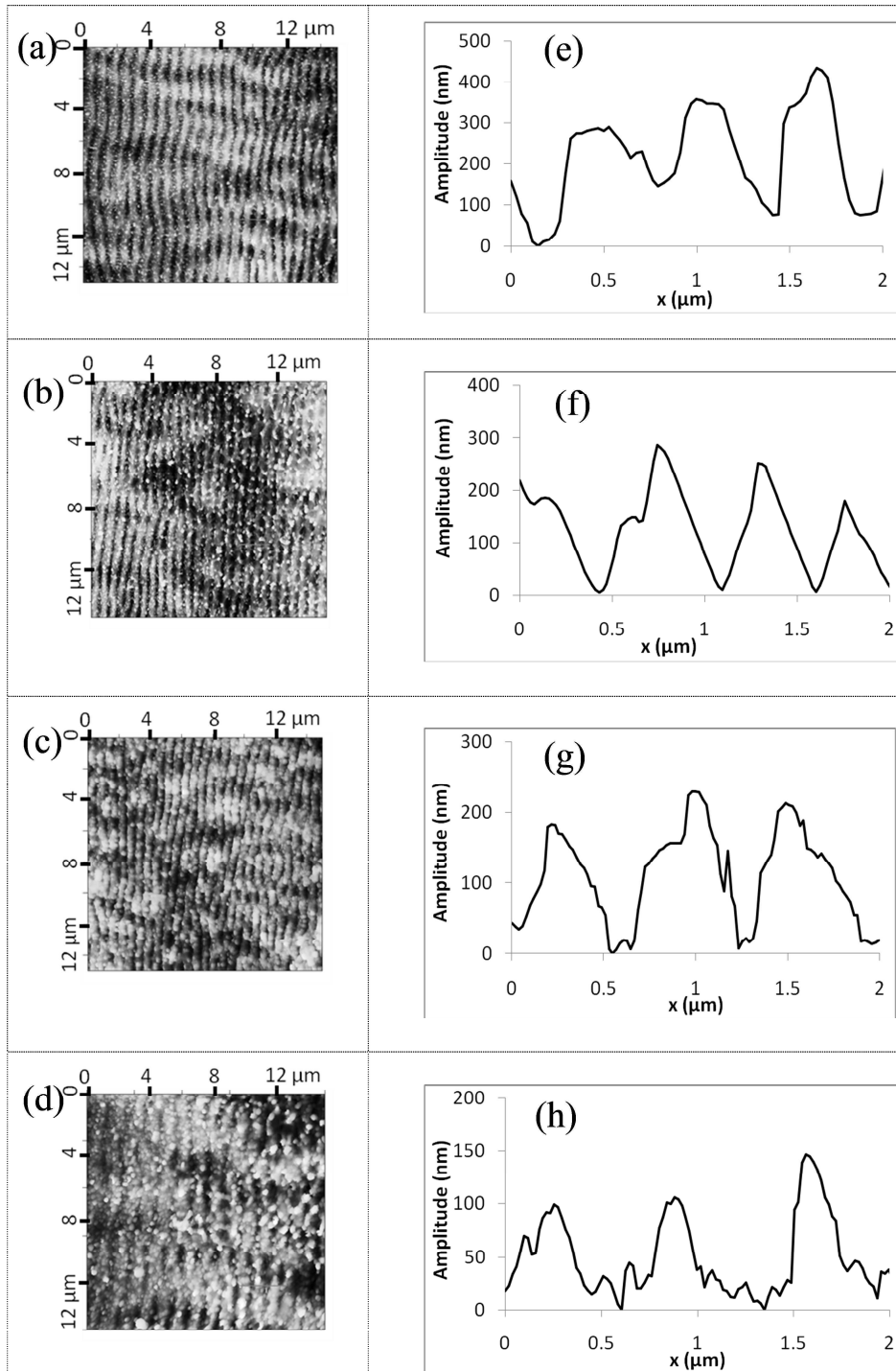


Figure 4.3 : Analyse de la morphologie des LIPSS sur les différents matériaux : Ru (a, e), W (b, f), Ni (c, g) et Cu (d, h) dans les mêmes conditions d'énergie et de nombre d'impulsion ( $0.5 \text{ J/cm}^2$  et 50 impulsions). Images AFM sur  $15\mu\text{m} \times 15\mu\text{m}$  (a, b, c, d) et lignes de profil déduites des images AFM, montrant la section transverse de la topographie des LIPSS(e, f, g, h).

## Chapitre IV

Nous pouvons noter une augmentation de l'amplitude des LIPSS avec une augmentation de la fluence, c'est à dire avec la diminution de la distance par rapport au centre de l'impact pour le Cu et W. Le Ni présente lui une diminution significative de l'amplitude des LIPSS lorsque la fluence augmente, alors qu'une faible diminution est observée pour le Ru. Ces évolutions peuvent être liées à priori à l'évolution de la force de couplage électron-phonon  $\gamma$  en fonction de la température (figure. 4.5) [LZ08]. Cette évolution de la force de couplage  $\gamma$  du Ru avec la température n'est pas disponible dans la littérature, mais les résultats obtenus dans le présent travail suggèrent une diminution douce de  $\gamma$  avec l'augmentation de la température électronique de ce métal.

Comme l'énergie déposée dans le matériau dépend directement de la fluence, il semble que le profil du dépôt d'énergie a une grande influence. La profondeur de pénétration du tungstène est plus élevée que celles des autres matériaux étudiés, le confinement de ces matériaux est plutôt attribué à une relaxation différente après l'irradiation, cette question fera l'objet d'une discussion dans la section suivante.

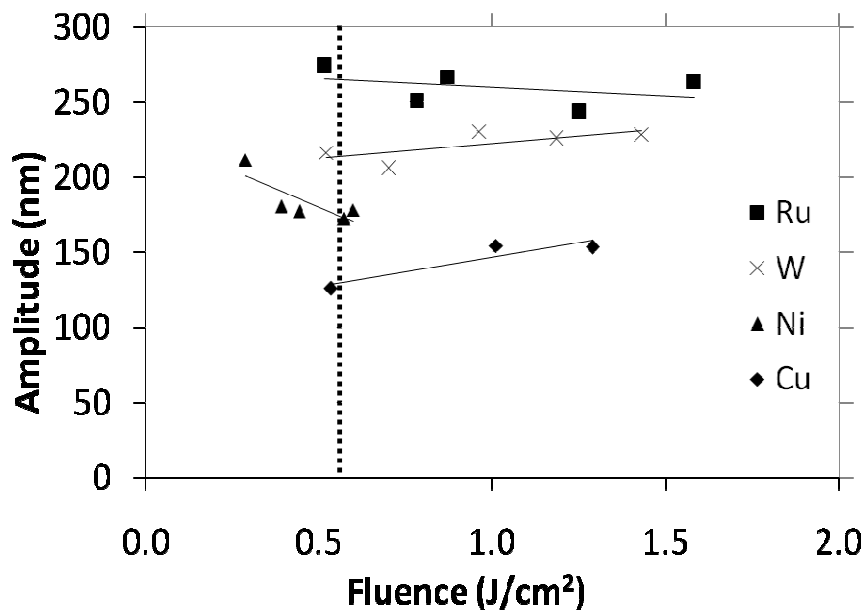


Figure 4.4. Amplitude des LIPSS pour différents matériaux avec 50 impulsions en fonction de la fluence locale. La ligne pointillée indique la valeur de la fluence correspondant aux mesures AFM de la figure 4.3.



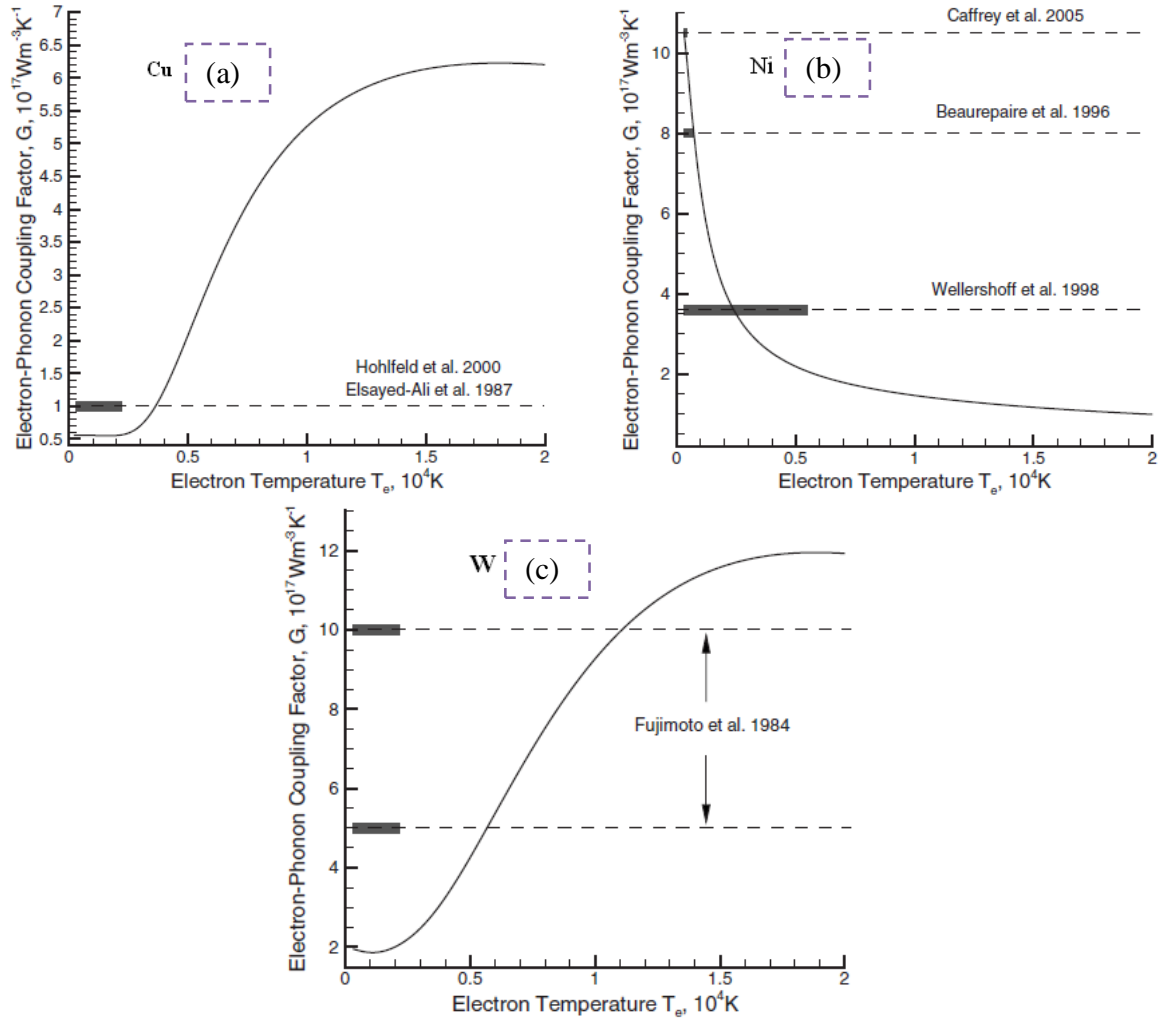


Figure 4.5. Evolution de la force de couplage electron-phonon en fonction de la temperature des electrons pour les differents métaux W (c), Ni (b) et Cu (a) selon [LZ08].

### **2.3. Discussion : Influence de la température électronique sur le couplage électron phonon en formation des LIPSS**

Cette section propose une discussion sur la base des propriétés physiques des différents matériaux afin de mieux cerner leurs comportements sous irradiation par des impulsions ultracourtes. L'interaction d'une impulsion laser ultracourte avec la surface métallique conduit à une augmentation rapide de la température électronique  $T_e$ , jusqu'à atteindre typiquement  $10^4$  K, tandis que la thermalisation entre les sous-systèmes électronique et ionique se déroule sur une échelle de temps beaucoup plus longue (environ 1-50 ps) [AKP74]. La dynamique révèle un processus en trois étapes : la première étape est l'absorption complexe de la lumière laser, la deuxième étape est de modulation de la température électronique à des délais très courts et la dernière étape est les processus de relaxation hydrodynamiques qui refroidissent la surface métallique du système et qui pourraient générer des instabilités et un déplacement des lignes de contact gaz-liquide ou liquide-solide. À l'échelle nanométrique définie par la profondeur de peau, la lumière incidente se combine aux ondes électromagnétiques de la surface pour donner lieu à l'onde plasmon de la surface (SP). La génération SP le long de l'interface métal-air par une radiation incidente peut produire un dépôt d'énergie modulée et un gradient de température de la crête à la vallée des pré-ripples.

En raison d'une excitation laser ultrabrève, le nombre d'électrons libres et la fréquence des collisions électroniques peuvent radicalement changer, et les propriétés optiques évoluer significativement [GCP11, AKP74]. La durée de la relaxation thermique est déterminée par le taux d'échange d'énergie entre les électrons et le réseau cristallin. Durant les premières picosecondes, les électrons et le réseau de phonons commencent à s'équilibrer, et une couche mince de surface subit une fusion.

Pour étudier la corrélation entre la dynamique de la structure électronique après le chauffage laser et la dépendance de la fluence laser sur la nanostructure, on a fait le parallèle entre la profondeur de fusion  $L_c$  ou la profondeur de pénétration d'un matériau et l'amplitude des LIPSS.  $L_c$  est définie comme une distance de pénétration des électrons avant le couplage au réseau, elle dépend fortement de la température des électrons  $T_e$  et de la constante de couplage électron-phonon. En supposant que la température ionique  $T_i$

## Chapitre IV

de la couche chauffée est égale à la température de fusion  $T_m$ , la dépendance de  $L_c$  peut être estimée comme suit [CBS88] :

$$L_c = \left( \frac{128}{\pi} \right)^{1/8} \left( \frac{C_i}{A_e T_m} \right)^{1/4} \left( \frac{K}{\gamma} \right)^{1/2} \quad (4.1)$$

$L_c$  est relié la conductivité d'équilibre  $K$  et à la force de couplage (e-ph)  $\gamma$ .  $A_e$  représente une dépendance linéaire à  $T_e$  de la capacité calorifique électronique  $C_e$  ( $A_e = T_e \cdot C_e$ ) [AM76].  $C_i$  est la capacité calorifique des ions.

La dépendance de  $L_c$  à la température électronique ( $T_e$ ) est présentée dans la figure 4.6 : elle a été calculée par J.P. Colombier pour une plage de température électronique recouvrant celle obtenues dans notre expérience.

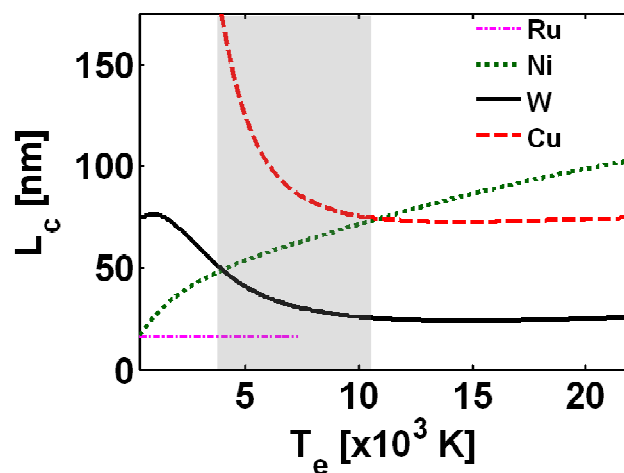


Figure 4.6 : Calcul de la profondeur de diffusion des électrons ( $L_c$ ) en fonction de la température électronique pour les différents matériaux solides sur le seuil de fusion. La fenêtre correspondant à la plage prévue de la formation des LIPSS est représentée par la zone grise.

## Chapitre IV

La profondeur de pénétration effective des électrons chauds  $L_c$  se traduit par la redistribution de l'énergie à l'intérieur d'un métal, durant le temps d'équilibre électron-phonon, au seuil de la fusion. Il serait utile d'estimer qualitativement le confinement de l'énergie induite par le laser. Dans cette estimation approximative, on suppose que la formation des LIPSS est liée à une phase de fusion à la surface du métal avec une température proche de celle de la fusion. Dans l'expérience, la variation de la température électronique est liée directement à l'influence de la fluence laser. Pour le Cu et W, lorsque la température électronique  $T_e$  augmente, la profondeur  $L_c$  diminue [AZI06]. Un processus inverse se produit pour le Ni, ce qui pourrait expliquer l'évolution d'amplitude des LIPSS en fonction de la température, observée dans la Figure 4.4. Ce résultat paradoxal peut être interprété dans le cadre de la topologie de la structure électronique. La structure de bande du Cu est représentée par une large bande d'électrons quasi-libres s-p située à quelques eV en dessous de l'énergie de Fermi, cette bande et la bande d qui est relativement étroite et facile à exciter se chevauchent et s'hybrident mutuellement comme cela est représenté sur la figure (4.7).

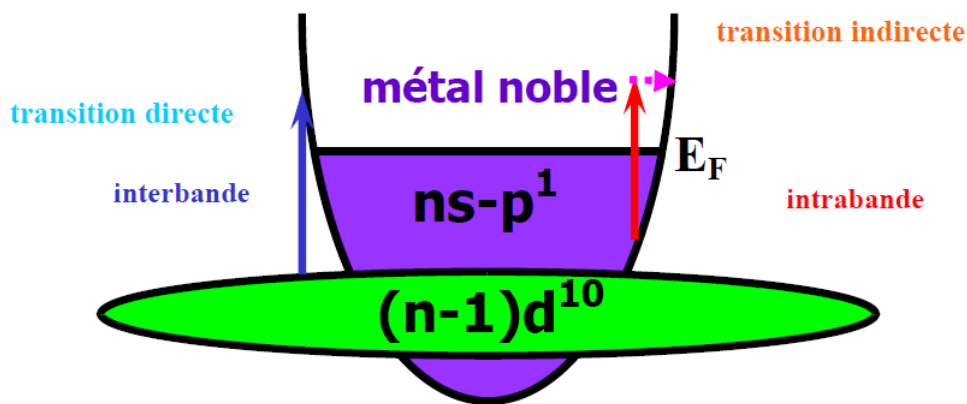


Figure 4.7 : Schéma représentant les deux types de transitions électroniques, interbandes et intrabandes, mises en jeu lors de l'interaction d'un métal noble avec la lumière, Une transition interbande est une transition directe, alors qu'une transition intrabande est une transition indirecte [Bil06]

Pour Cu, comme d'autres métaux nobles, une excitation thermique d'un grand nombre d'électrons de la bande d produit un renforcement du couplage électron-phonon et une réduction du libre parcours moyen des électrons  $\lambda_e = V_F \tau_{ep}$ , où  $V_F$  est la vitesse des électrons de Fermi et  $\tau_{ep}$  caractérise le temps de couplage électron-phonon. La tendance

## Chapitre IV

de l'évolution de l'amplitude des LIPSS en fonction de la température pour les métaux de transition disposant de bandes 3d (Ni), 4d (Ru) et 5d (W) est inversée. Pour comprendre cette tendance, rappelons que les métaux de transition se différencient par rapport aux métaux nobles en raison de leur niveau de Fermi qui tombe dans la bande d, tandis que pour les métaux nobles, la bande d est remplie d'électrons. Aussi, dans le cas de l'excitation des métaux de transition, l'excitation thermique des électrons de la bande d en dessous du niveau de Fermi vers l'état d'énergie supérieurs peut produire un déplacement du potentiel chimique. La distribution de l'énergie est donc modifiée et  $\gamma$  diminue avec l'augmentation de  $T_e$ . Pour le Ru l'évolution de la force de couplage électron-phonon avec la température n'est pas traitée dans la littérature, mais les résultats obtenus dans ce présent travail suggèrent une diminution faible avec la température électronique pour ce métal. Cet effet a été démontré dans la référence [LZ08] pour le Ni et Ti mais des arguments semblables devraient rester valables pour le Ru. Pour le W, en raison de leur niveau de Fermi qui tombe dans la bande d, la diminution de  $\gamma$  commence pour une température  $T_e$  supérieure à la gamme considérée, ainsi  $L_c$  montre une légère baisse sur la figure 4.6 pour ce métal. La taille de la couche fondue détermine le confinement de l'énergie absorbée et le gradient longitudinal de la température du métal  $\Delta_z T$ . Ce gradient détermine la distribution de la pression et l'expansion perpendiculaire de la surface à la vitesse du son. Les gradients de surface pourraient participer à la force locale de Marangoni, pouvant affecter la croissance des ondulations, comme cela a été discuté dans les références [HVG09, GVR09].

### **3. Conclusion**

La présente étude se concentre sur le rôle important du couplage électron-phonon dans l'évolution de l'amplitude des LIPSS dans les matériaux métalliques sous irradiation laser ultrarapide. On a exposé à une irradiation laser ultracourte, dans des conditions expérimentales identiques, deux types de métaux (noble et de transition) possédant différentes propriétés, dont différentes constantes de couplage électron-phonon. Il résulte de ces expériences que la force de couplage électron-phonon s'avère être l'un des paramètres clés à l'origine de la croissance des LIPSS formées sur les métaux. On démontre également que l'amplitude des ondulations, mesurée à différentes valeurs de fluence confirme l'évolution attendue de la force de couplage électron-phonon avec la température. Enfin, le présent travail explore l'évolution, inconnue jusque-là, du couplage électron-phonon avec la température pour le Ruthénium. Il semblerait que le comportement de ce dernier ressemble à celui du nickel, avec une diminution faible de la force de couplage électron-phonon avec la température.

## *Chapitre V*

### *« Dynamique de la formation des LIPSS (Expérience pompe-sonde) »*

**Résumé :** La dynamique de la formation des LIPSS a été étudiée sur deux métaux différents, le Tungstène et l'Aluminium par l'intermédiaire d'une expérience pompe-sonde.

## 1. Introduction

Dans les sections précédentes, nous avons abordé le rôle important des plasmons de surface dans le couplage laser matière. Dans ce cadre nous avons examiné ce couplage par l'intermédiaire de réseaux avec différentes périodes (440-800 nm) fabriqués à la surface d'un métal (Ni). Nous avons par la suite étudié le rôle important de la force du couplage électron-phonon dans l'évolution de l'amplitude des LIPSS, une expérience a donc été réalisée sur différents matériaux avec différentes constantes de couplage électron-phonon. Cette expérience a révélé que l'évolution de l'amplitude des LIPSS, mesurée en fonction de la fluence pourrait être corrélée avec l'évolution attendue de la force de couplage électron-phonon avec la température. Ce constat nous incite à penser que l'étude de l'influence du temps de relaxation électron phonon sur la formation des LIPSS est indispensable, nous présentons dans ce chapitre cette étude à l'aide d'une expérience pompe-sonde sur deux métaux (W et Al) que nous présenterons dans les sections suivantes.



## 2. Motivation de l'étude

La dynamique du couplage laser-matière correspond à un changement transitoire des propriétés du système absorbant, dû à une excitation des plasmons ou à une relaxation électrons-phonon. La figure 5.1, présente les différentes étapes de cette dynamique. La première étape consiste en l'excitation du plasmon de surface par une forte absorption de l'énergie du faisceau laser incident (chapitre 3). L'énergie captée par ces électrons libres se diffuse ensuite à l'intérieur du matériau par l'intermédiaire du couplage électron-phonon (chapitre 4). Ce couplage est caractérisé par un temps de relaxation thermique entre électron et phonon  $\tau_{e-ph}$ . Ce temps de couplage laser-matière est un facteur influant sur la formation des LIPSS, comme cela a été montré dans le précédent chapitre. Il a d'ailleurs fait l'objet de beaucoup d'études, comme celle qui porte sur le rendement de l'émission des ions [SHB02]. J. Kim et al attestent dans leur article [KNC08] que la formation des LIPSS est une conséquence de l'oscillation des électrons chauds à la surface du matériau. Ces oscillations peuvent être perturbées par une impulsion ultérieure qui aurait lieu avant le transfert d'énergie des électrons chauds au réseau cristallin froid.

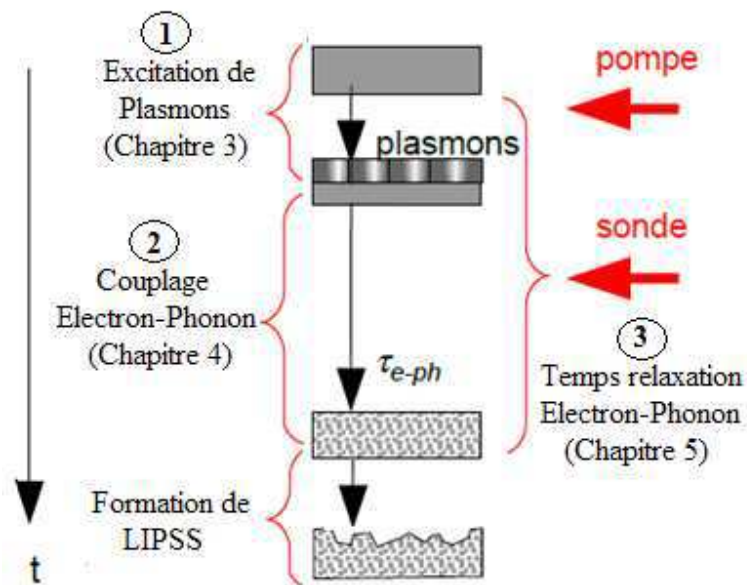


Figure 5.1 : Différentes étapes du couplage laser-matière par deux impulsions pompe sonde avec  $\tau_{e-ph}$  le temps de couplage électron-phonon.

## Chapitre V.

Ces études nous incitent à proposer dans ce chapitre une étude expérimentale sur l'effet dynamique intervenant dans la formation des LIPSS. Les étapes majeures de l'expérience consistent en la génération d'une paire d'impulsions (pompe et sonde) et le réglage du délai qui les sépare. Afin de mieux comprendre le rôle de la relaxation électron-phonon dans la formation des LIPSS, nous portons notre étude sur deux métaux différents ce qui nous permet d'aborder les différents aspects qui régissent cette dynamique. Aussi, nous avons choisi le tungstène et l'aluminium, car ces métaux se distinguent par des densités d'états différentes autour de l'énergie de Fermi.

### **3. Irradiation par paires d'impulsions avec un délai de séparation**

Pour mener à bien cette étude, nous avons utilisé deux dispositifs expérimentaux différents : dans les expériences sur l'aluminium, effectuées à Cottbus, les doubles impulsions étaient préparées par la division d'une impulsion parente dans un interféromètre de Michelson. Le temps entre deux impulsions variables allant jusqu'à 100ps. Dans les expériences sur le tungstène, réalisées au Laboratoire Hubert-Curien, nous nous sommes servis d'un dispositif de mise en forme temporelle, accessible par SLM au sein du laboratoire. Ce dispositif peut délivrer des doubles impulsions avec des délais variables et limités au maximum à 20ps.

#### **3.1. Aluminium**

L'interféromètre de Michelson est un dispositif qui permet de générer deux impulsions pompe-sonde et de contrôler le délai qui les sépare. Les différentes composantes de ce dispositif sont présentées dans la section 2.2.2 du chapitre II.

##### **3.1.1. Conditions expérimentales**

Dans notre expérience relative à l'irradiation de l'aluminium, nous avons utilisé le système laser présenté dans la section 2.1.2 (chapitre 2). Nous avons complété notre système laser par un dispositif d'interférométrie, nous permettant d'obtenir une double impulsion à séparation variable ajustée entre 0s et 100 ps (on trouvera plus de détails dans la section 2.2.2 du chapitre II). Le faisceau laser est polarisé verticalement, avec une

## Chapitre V.

incidence normale, à travers une lentille convergente de 300 mm de focale. Grâce à ce dispositif on réalise une irradiation sur différents matériaux dans une chambre sous vide sous une pression d'environ  $10^{-8}$  mbar. L'ajustement de la puissance laser est effectué à l'aide d'une lame  $\frac{1}{2}$  onde et d'un polariseur. Nous utilisons également un Shutter mécanique permettant de contrôler le nombre d'impulsions. L'alignement des faisceaux laser est obtenu suivant la technique de caractérisation spatiale du faisceau (section 2.4 chapitre II). L'irradiation de l'aluminium a été effectuée dans les mêmes conditions expérimentales (avec une fluence laser de  $0.2 \text{ J/cm}^2$  et 1000 impulsions) en faisant simplement varier le temps entre les impulsions pompe-sonde.

### **3.1.2. Résultats des variations de la morphologie de la surface d'Al**

Différents impacts laser ont été effectués dans les conditions expérimentales exposées précédemment. La figure 5.2 montre les images MEB des différents impacts réalisés par des impulsions pompe-sonde en faisant varier le délai entre deux impulsions de 0s à 100 ps, l'irradiation à été réalisé avec une fluence de  $0.2 \text{ J/cm}^2$  et 1000 impulsions. Ces images montrent donc l'évolution des LIPSS sur la surface d'aluminium en fonction de la variation du délai entre deux impulsions. Les LIPSS sont perpendiculaires au champ électrique incident (en double flèche) et leur période varie entre 1 et  $2\mu\text{m}$ . Dans la littérature, ces structures sont nommées les « grooves », leur polarisation est parallèle au champ électrique [BMS05]. Dans une plage de temps allant de 0fs à 100 ps, nous constatons une croissante variation des LIPSS en fonction du délai entre deux impulsions pompe-sonde, cette variation montre trois plages différentes d'évolution des LIPSS : la première plage entre 0s à 20ps, connaît une augmentation des LIPSS en fonction de l'augmentation du délai. Dans la seconde plage, les LIPSS deviennent importantes autour de 20 ps, la surface irradiée est quasiment couverte par les LIPSS. La dernière plage montre une décroissance des LIPSS sur la surface irradiée pour des délais supérieurs à 20 ps. L'efficacité des impulsions pompe-sonde est donc manifeste pour certains délais.

Chapitre V.

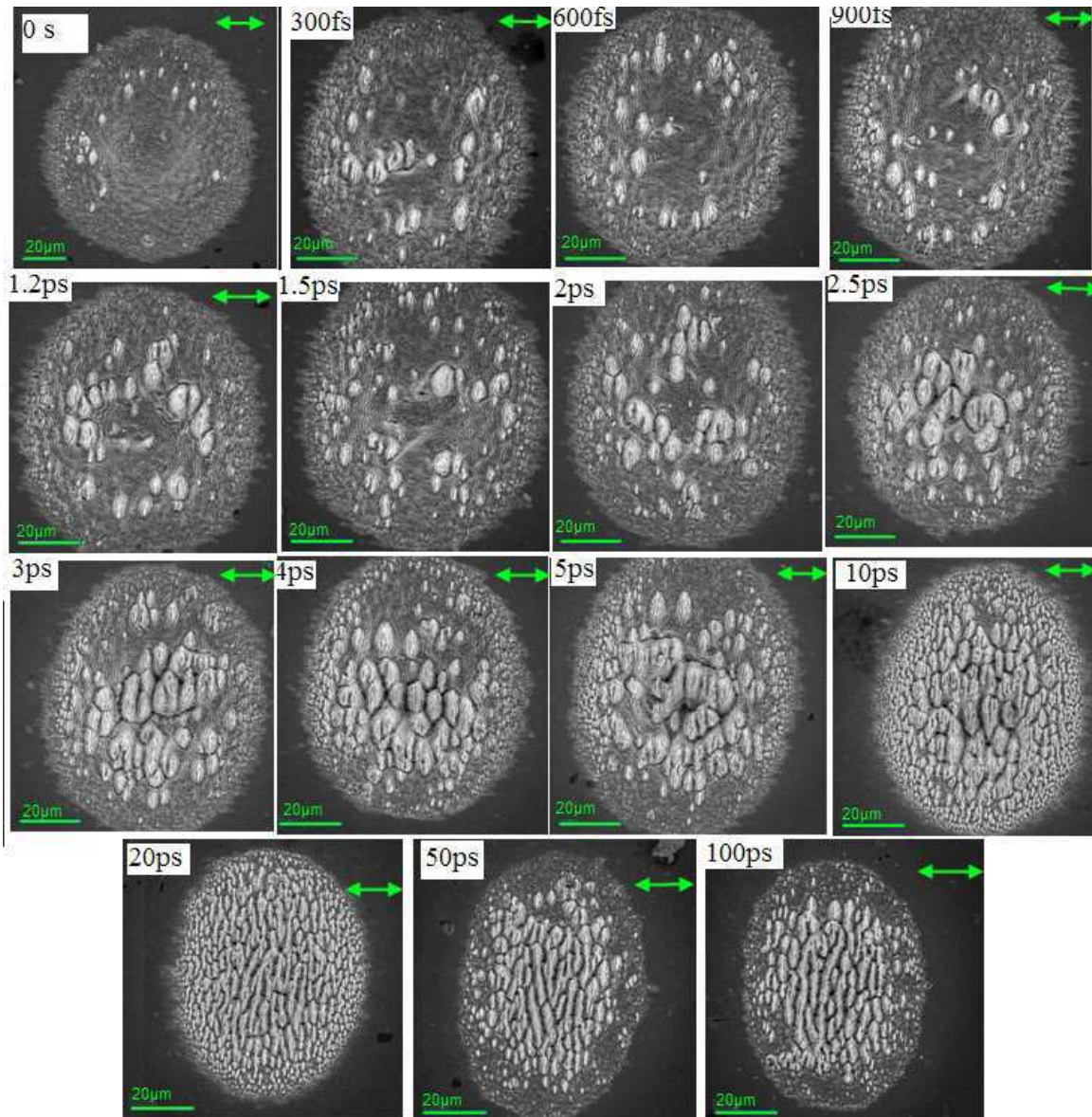


Figure 5.2. Evolution des structures LIPSS en fonction des délais entre deux impulsions allant de 0fs à 100 ps dans les mêmes conditions expérimentales, sur une surface d'aluminium irradiée par 1000 paires impulsions de fluence de  $0.2 \text{ J/cm}^2$ .

## **3.2. Tungstène**

### **3.2.1. Conditions expérimentales**

Dans notre expérience relative à l'irradiation de Tungstène, nous avons utilisé un système laser présenté dans la section 2.1.1 (chapitre 2). Nous avons complété notre système d'irradiation, par un système de mise en forme temporelle par « SLM » fournissant des doubles impulsions avec des délais ajustables de 0 fs à 20 ps. Nous avons également utilisé une technique de corrélation permettant de contrôler la largeur à mi-hauteur de notre impulsion et la durée entre deux impulsions. Les différentes composantes du dispositif sont présentées dans les sections 2.2.1 et 2.3 du chapitre II. Le faisceau laser est polarisé horizontalement, avec une incidence normale, à travers une lentille convergente de 50.8 mm de focale. L'irradiation de l'échantillon est réalisée à pression atmosphérique dans le plan image d'un diaphragme de diamètre 2.8 mm produisant un spot laser d'un diamètre de 54.68  $\mu\text{m}$  à la surface du matériau. L'échantillon est fixé sur un système de translation 3-axes afin d'obtenir un positionnement précis des échantillons. Les différentes irradiations de W ont été effectuées dans les mêmes conditions expérimentales (avec une fluence laser de 0.29  $\text{J}/\text{cm}^2$  et 80 doubles impulsions) en faisant varier le temps entre double impulsions.

### **3.2.2. Résultats des variations de la morphologie de la surface du W**

Les différents impacts sur W ont été réalisés dans les conditions présentées précédemment. La figure 5. 3 montre les différentes images MEB des impacts réalisés sur la cible de tungstène irradiée par des doubles impulsions présentant des délais variables allant de 0 fs à 20 ps dans les mêmes conditions expérimentales, à une fluence laser de 0.29  $\text{J}/\text{cm}^2$  avec 80 doubles impulsions. Les images de cette figure, présentent l'évolution de la formation des LIPSS à la surface du tungstène en fonction du délai entre double impulsions. Suite au nombre d'impulsions plus faible, nous avons obtenus des LIPSS avec une période est située autour de la longueur d'onde du faisceau incident avec une orientation est perpendiculaire au champ électrique incident (double flèche). Nous pouvons identifier trois différentes plages d'évolution des LIPSS en fonction des délais

## Chapitre V.

entre les deux impulsions. La première plage entre 0 fs et 1.2 ps révèle une augmentation de la formation des LIPSS avec l'augmentation du délai. Dans la seconde plage, la formation des LIPSS devient maximale autour de 1.2 ps, la surface irradiée est quasiment couverte par des LIPSS. La dernière plage se trouve au-dessus de 1.2 ps et correspond à une diminution de la formation des LIPSS sur la surface irradiée jusqu'à la disparition de toute structure pour des délais supérieurs à 10 ps.

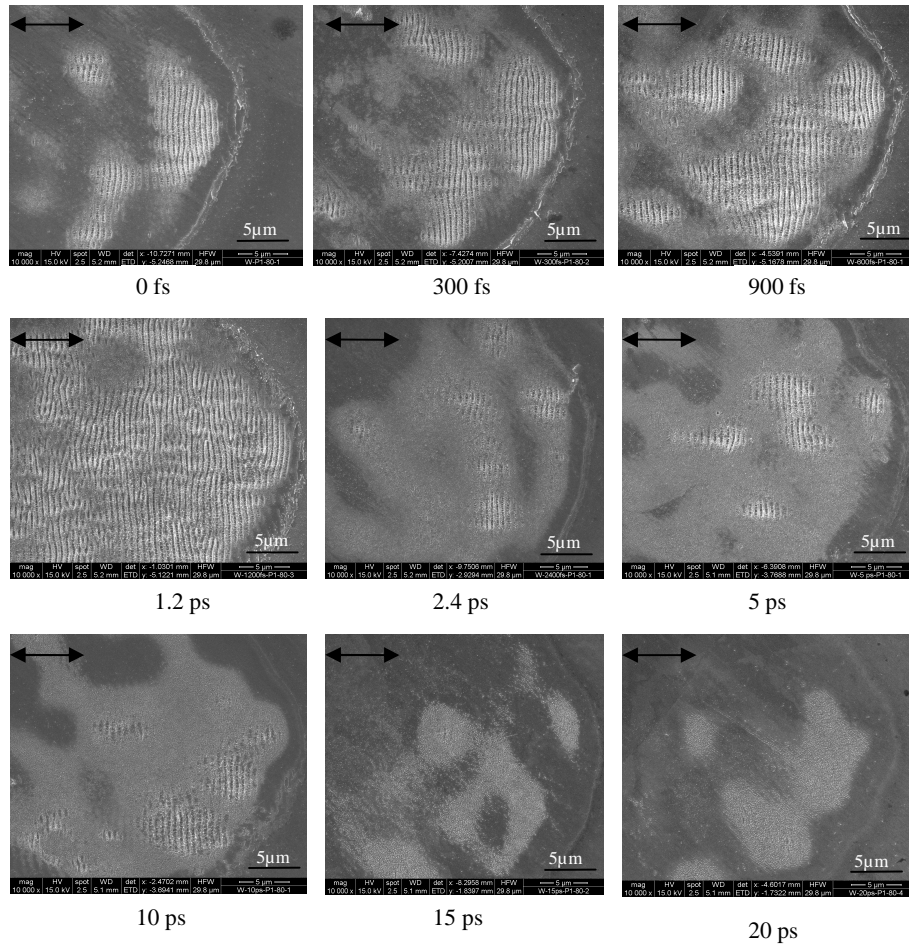


Figure 5.3 : Evolution des LIPSS en fonction des délais entre deux impulsions allant de 0fs à 20 ps sur une surface de tungstène irradiée avec une fluence de 0.29 J/cm<sup>2</sup> et 80 paires d'impulsions.

Dans la section suivante nous allons discuter l'influence du délai entre double impulsions sur l'évolution des LIPSS.

#### 4. Discussion

Lors d'une irradiation laser femtoseconde d'une surface métallique, la première impulsion peut créer un réseau de plasmons à la surface du métal par l'intermédiaire d'une excitation de la densité des électrons libres à la surface de matériau (section 3.2.3.4 chapitre I). Ensuite, l'énergie des électrons chauds se diffuse dans le réseau cristallin via l'interaction électron-phonon. Enfin, l'ensemble du système atteint l'équilibre. Comme nous l'avons discuté dans le chapitre précédent, l'absorption complexe de la lumière laser (excitation plasmons) conduit à une modulation de la température électronique à des délais très courts. Ensuite les processus de relaxation hydrodynamique refroidissent la surface métallique du système pouvant générer des instabilités et un déplacement des lignes de contact gaz-liquide ou liquide-solide. Un retard entre deux impulsions laser femtoseconde est utilisé pour examiner l'effet de cette dynamique sur l'évolution de la formation des LIPSS. Les excitations laser femtoseconde induisent un non-équilibre thermique entre les deux sous-systèmes, le transfert d'énergie du gaz d'électrons vers le réseau cristallin du métal conduit à un déséquilibre thermique. Le temps nécessaire pour atteindre l'équilibre thermique est appelé le temps de la relaxation électron-phonon. Dans ce cas, le temps de refroidissement du gaz d'électrons et d'échauffement du réseau cristallin peut être influencé par le retard entre les deux impulsions pompe-sonde.

Afin d'exploiter les résultats obtenus sur l'Al, nous avons déterminé la densité des LIPSS pour différents délais par un comptage dans une aire définie. Les résultats sont représentés sur la Figure 5.4. Ce graphe montre trois plages différentes de l'évolution de la densité des LIPSS en fonction des délais entre deux impulsions pompe-sonde. La première partie de ce graphe montre une croissance de la densité des LIPSS en fonction de l'augmentation du délai entre deux impulsions jusqu'à un maximum autour de 20 ps, puis on perçoit une décroissance de la densité des LIPSS pour des grands délais pompe-sonde.

## Chapitre V.

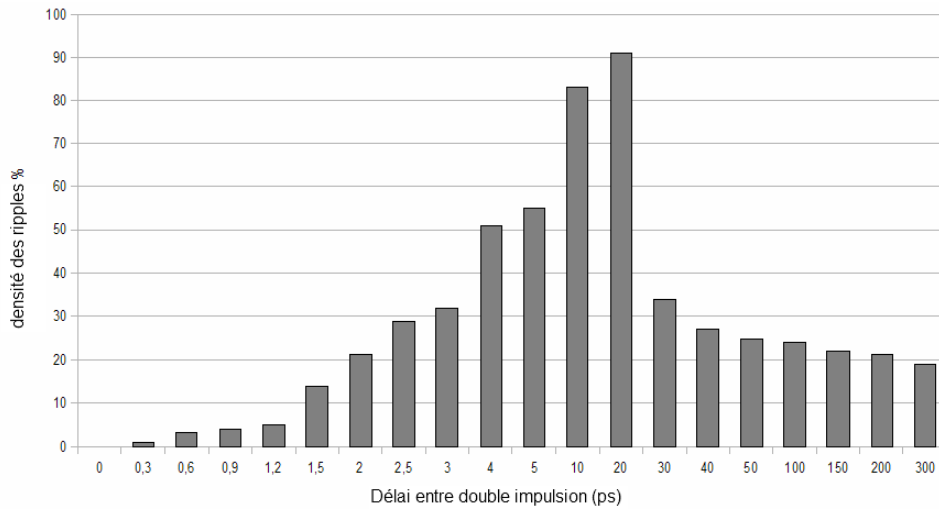


Figure 5.4 : Densité des LIPSS en fonction des délais entre deux impulsions allant de 0 fs à 300 ps sur une surface d'aluminium irradiée avec une fluence de 0.2 J/cm<sup>2</sup> et 1000 paires impulsions.

A l'issue de ces résultats, nous constatons une corrélation entre l'évolution de la densité des LIPSS et un effet dynamique introduit par un processus hydrodynamique. Dans le cadre de notre expérience, l'évolution de la densité des LIPSS atteint un maximum autour de 20 ps. Le calcul du temps hydrodynamique de propagation d'une onde ( $\tau_h$ ), dans un métal avec une vitesse de son ( $V_s$ ) est estimé par le rapport entre l'épaisseur de la couche métallique chauffée ( $d$ ) et la vitesse du son dans ce métal [ZNN08] :

$$\tau_h = \frac{d}{V_s}$$

Les calculs effectués montrent que le temps hydrodynamique pour une excitation d'une surface d'aluminium par un laser femtoseconde tourne autour de 20 ps pour une profondeur de la couche chauffée  $d = 110$  nm et une vitesse de son dans ce métal de 6400 m/s [ZNN8]. Le graphe de la figure 5.4 montre une corrélation entre, d'une part la densité des LIPSS et le temps variant entre deux impulsions et d'autre part, ce temps hydrodynamique. Le graphe indique trois plages différentes : La première se caractérise par une augmentation de la densité des LIPSS entre 0s et 10 ps. La deuxième plage présente un maximum de la densité des LIPSS autour de 20 ps et la dernière montre une diminution effective de la densité des LIPSS pour des grands délais. En revanche, lorsque le temps du retard appliqué entre les deux impulsions est inférieur au temps



## Chapitre V.

hydrodynamique  $\tau_h$ , la deuxième impulsion peut perturber la pénétration des ondes générées par la première impulsion et voyageant à la vitesse du son à l'intérieur du métal. La deuxième plage d'évolution des LIPSS, comprend le maximum de la courbe, la densité devient maximale autour d'un délai de 20 ps entre deux impulsions pompe sonde. On peut donc considérer que le temps entre deux impulsions est le même que le temps hydrodynamique d'après les calculs effectués ci-dessus. Il existerait donc une bonne cohérence entre les ondes générées par l'impulsion ultérieure qui se propagent à la vitesse du son à l'intérieur du métal et les ondes générées par la première impulsion. Ainsi, pour ce délai, le processus d'efficacité des impulsions pompe-sonde peut conduire à une forte absorption d'énergie. La dernière gamme du graphe montre une décroissance significative de la densité des LIPSS. Dans ce cas le délai entre deux impulsions pompe-sonde est plus grand que le temps hydrodynamique, donc les ondes de la première impulsion n'affectent plus l'absorption de la deuxième impulsion. Sur la base de ces résultats présentés ci-dessus nous pouvons déduire que le temps hydrodynamique a une corrélation importante avec la formation des LIPSS. Un effet similaire a été observé concernant l'influence du délai entre deux impulsions pompe-sonde sur le rendement de l'émission des ions, ce constat fut présenté par Schmidt et al [SHB00]. Dans le cadre de leur expérience pompe-sonde sur le rendement d'émission des ions dans l'aluminium, ils ont montré que le rendement d'émission des ions devient maximal pour un certain délai entre deux impulsions, ce maximum a été situé autour de 17 ps pour l'aluminium. Ce résultat est confirmé par Costache et al [CER06] qui ont également examiné le rendement d'émission des ions par une expérience similaire pompe-sonde, et ont situé le maximum de rendement pour l'aluminium autour de 17 ps. Le rendement maximum d'émission des ions fut expliqué par une forte absorption d'énergie, tel qu'avec ce temps de retard, l'impulsion sonde apporte plus d'énergie dans le système par une section efficace d'absorption plus élevée de la lumière incidente. Nos résultats corroborent ces résultats de la littérature en ce qui concerne l'efficacité des deux impulsions à un certain délai, conduisant à une forte absorption d'énergie par le système. Cette efficacité dépend de la nature du matériau utilisé.

## Chapitre V.

Dans le cas de l'Al nous avons obtenu des structures grooves avec un nombre de tirs laser élevé (1000 impulsions). Dans le cas de W, la période des LIPSS obtenues est de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde en raison d'un plus faible nombre de tirs laser (80 impulsions). Le graphe ci-dessous, présente la variation de la densité des LIPSS en fonction des délais entre les deux impulsions sur le W, ce calcul de la densité ayant été effectué sur les impacts de la figure 5.3. Notons que la densité des LIPSS calculée représente le rapport entre l'aire des LIPSS formées sur la surface de la tache irradiée et l'aire totale de cette même tache irradiée. Le délai entre double impulsions et la dynamique de la relaxation électron-phonon montrent une corrélation avec l'évolution des LIPSS dans cette expérience.

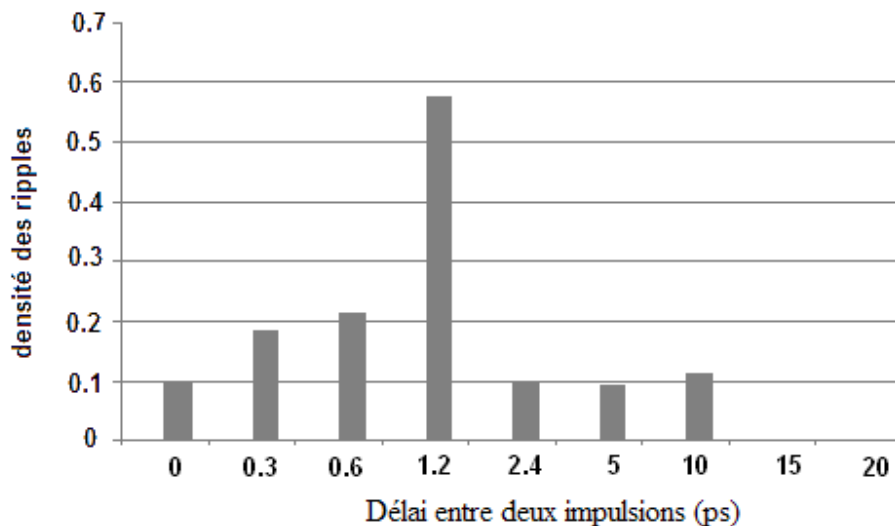


Figure 5.5. Densité des LIPSS en fonction du délai entre deux impulsions sur une surface de tungstène irradiée avec une fluence de  $0.29 \text{ J/cm}^2$  et 80 paires d'impulsions.

Dans ce graphe, l'évolution de la densité des LIPSS peut être divisée en trois plages de délais différents, en outre, ces gammes de délais pour le tungstène sont différentes de celles que l'on a constatées précédemment pour l'aluminium, ainsi les structures obtenues pour les deux matériaux sont différentes à cause des conditions expérimentales différentes (sections ci-dessus). Dans le cas du W, l'évolution de la densité des LIPSS est plutôt due à l'effet dynamique induit par le processus de la relaxation électron-phonon

## Chapitre V.

qu'à perturbation du réseau due à l'effet hydrodynamique observée pour l'Al. Le temps estimé pour le couplage électron-phonon dans le W est autour de 1.2 ps [FLI84]. Ce temps est bien corrélé au délai entre deux impulsions, pour lequel la densité des LIPSS devient maximale. Pour comprendre l'évolution de la densité des LIPSS présentée dans la figure 5.5, nous proposons la dynamique suivant : l'augmentation de la densité des LIPSS entre 0s et 1.2 ps dépend fortement du temps de relaxation de l'énergie entre l'électron et le phonon ; plus on approche du temps d'équilibre thermique entre ces deux systèmes, plus la densité des LIPSS devient importante. Cela est dû à la cohérence dans le temps entre les énergies des deux impulsions transférées dans le matériau. Cette cohérence peut conduire à une forte absorption de l'énergie dans le matériau. En revanche, lorsque le temps du retard appliqué entre les deux impulsions est inférieur au temps d'équilibre thermique entre les deux sous-systèmes (e-ph), l'oscillation des électrons chauds à la surface du matériau générée par la première impulsion peut être perturbée par une impulsion ultérieure qui atteindrait l'échantillon avant le transfert d'énergie des électrons chauds au réseau cristallin. Enfin, la dernière plage de la figure 5.5, montre une décroissance significative de la densité des LIPSS. Dans ce cas, le délai entre deux impulsions est plus grand que le temps d'équilibre thermique entre les électrons et les phonons, et la deuxième impulsion n'affecte plus l'absorption de la première. La plus grande partie de l'énergie a en effet déjà été transférée au réseau cristallin [KNC08].

Un grand défi reste encore à relever dans ce travail, on doit en effet, exploiter ou montrer l'existence d'une corrélation entre les deux différentes structures observées dans les deux matériaux.

#### **4. Conclusion**

Nous avons consacré cette partie de l'étude au rôle de la dynamique des processus impliqués dans la formation des LIPSS dans les matériaux métalliques sous irradiation laser ultrarapide. Nous avons réalisé une irradiation laser femtoseconde sur deux métaux différents (Al et W), chaque irradiation est réalisée dans les conditions expérimentales différentes en variant le délai entre les deux impulsions. Nous avons pu mettre en évidence un délai de séparation optimal entre les deux impulsions, délai propre à chaque métal dans les conditions d'irradiation choisies. Pour chaque métal, le temps caractérisant le maximum de la densité des LIPSS est en corrélation avec une forte absorption d'énergie dans le matériau.

Conclusion générale.

## *Conclusion générale*

Conclusion générale.

## Conclusion générale

---

Ce mémoire présente les résultats expérimentaux de notre étude concernant la génération de structures périodiques « LIPSS » lors de l'interaction entre un laser femtoseconde et des métaux, en employant diverses techniques expérimentales. Différentes expériences sont conçues pour expliquer les processus fondamentaux de l'absorption laser femtoseconde, de l'excitation électronique et des changements morphologiques de la surface à l'échelle nanométrique. Ce travail a été réalisé dans le but d'identifier sur les effets de l'interaction laser femtoseconde sur les différents types de métaux. Le schéma de la figure 6.1 présente un résumé chronologique des différents processus de la dynamique de la formation des LIPSS étudiés dans le cadre de ce travail.

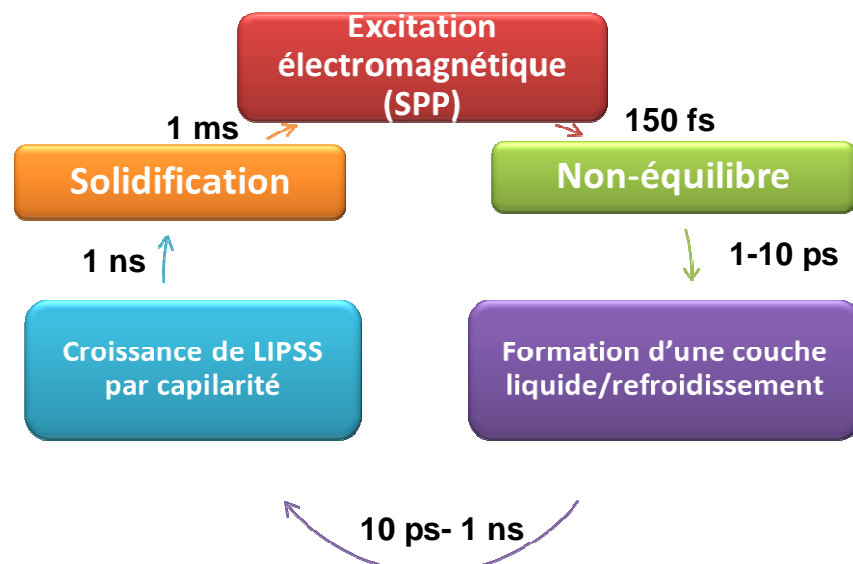


Figure 6.1. Schéma chronologique des différents processus de la formation des LIPSS

Dans la première étape, durant l'excitation laser femtoseconde, une forte absorption d'énergie par le métal induit une excitation des plasmons de surface, produisant un état de non-équilibre du système. On assiste alors à la formation d'une couche liquide refroidissante suite à un échange thermique entre les deux sous-systèmes (électrons-ions). Entre 10 ps et 1 ns, on voit apparaître une croissance des LIPSS à la surface liée aux effets de capillarité (effet de tension de surface), suivie d'une solidification de la surface.

Nous avons commencé par étudier le rôle du couplage des plasmons de surface dans la formation des LIPSS. Pour ce faire, nous avons réalisé une irradiation avec une seule

## Conclusion générale.

impulsion et deux polarisations différentes TM et TE sur des réseaux dotés d'une large gamme de périodes allant de 440 à 800 nm. Ainsi, nous avons constaté que ces fines LIPSS ne sont générées que pour une période de réseau bien définie située autour de 750-760 nm, cela laisse supposer que les ondulations sont induites par le couplage avec les plasmons de surface. Nous avons ainsi pu démontrer que les plasmons de surface induits sous une excitation laser femtoseconde sont responsables de la formation de fines LIPSS sur la surface de nickel. Sur la base des calculs théoriques, il s'avère que la période du réseau attendue est différente de celle qui est calculée par la fonction de la constante diélectrique à  $\lambda = 800$  nm. Le modèle de Drude-Lorentz a été appliqué en tenant compte de la possibilité de changement de la constante diélectrique du nickel en raison de l'excitation laser ultra-courte.

Cette première étude est suivie d'une analyse sur le rôle du couplage électron-phonon dans la formation de LIPSS, dans les matériaux métalliques sous irradiation laser femtoseconde. Ainsi, dans les mêmes conditions expérimentales, nous avons procédé à une irradiation laser femtoseconde de quatre types de métaux (des métaux de transition : Ni, W, Ru et un métal noble : Cu) possédant différentes propriétés dont différentes constantes de couplage électron-phonon. Les résultats obtenus laissent penser que la croissance des LIPSS formées sur les métaux dépend fortement de la force du couplage électron-phonon. De plus, l'évolution des amplitudes des LIPSS mesurées en fonction de la fluence est bien corrélée à l'évolution de la force de couplage électron-phonon avec la température électronique. Nous avons également constaté que le Ruthénium, dont le comportement était inconnu avant ce travail semble, avoir le même comportement que le nickel, avec une diminution faible de la force de couplage électron-phonon avec la température.

Enfin, notre dernière étude a été consacrée au rôle de la dynamique des processus impliqués dans la formation des LIPSS dans les matériaux métalliques sous irradiation laser ultrarapide. Nous avons exposé à une irradiation laser femtoseconde deux métaux différents (Al et W) avec différents temps de relaxation électron-phonon dans les mêmes conditions expérimentales, en variant le délai entre les deux impulsions. On a ainsi pu observer trois régions différentes d'évolution des LIPSS en fonction de la variation du délai entre les deux impulsions. Nous supposons que cette évolution peut dépendre de l'effet dynamique de deux processus, dans le cas de l'aluminium, l'évolution peut être induite par un processus hydrodynamique alors que dans le cas du W, elle serait plutôt due à l'effet dynamique induit par le processus du couplage électron-phonon. Un grand défi reste encore à relever dans ce travail, on doit en effet, exploiter et montrer l'existence d'une corrélation entre les deux différentes structures observées dans les deux métaux.

*Annexe*



**Annexe :****Conditions d'excitation d'une onde plasmonique (d'après [Emm04])**

Cette annexe présente un calcul formel fondé sur les équations de Maxwell de la constante de propagation des plasmons de surface ainsi qu'une démonstration de la nécessité d'un faisceau polarisé TM incident sur l'interface entre un milieu diélectrique et un milieu métallique pour que le plasmon de surface puisse se propager. Equations de Maxwell dans un milieu non magnétique ( $\mu_r = 1$ ) :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0 & \vec{\nabla} \cdot \vec{H} = 0 \\ \vec{\nabla} \wedge \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} & \vec{\nabla} \wedge \vec{H} = \varepsilon_0 \varepsilon_r \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \end{array} \right. \quad (1)$$

En combinant ces équations, nous pouvons en déduire l'équation de propagation du champ magnétique dans un matériau non magnétique :

$$\vec{\nabla}^2 \cdot \vec{H} - \frac{\varepsilon_r}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{H}}{\partial t^2} = 0 \quad (2)$$

Avec  $c = (\varepsilon_0 \mu_0)^{-1/2}$ .

Dans le cas d'ondes planes, les champs peuvent s'écrire sous la forme suivante :

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{H} \\ \vec{E} \end{array} \right. = \frac{\vec{H}_0}{E_0} \exp i(k_x x + k_z z - \omega t) \quad (3)$$

Dans ces conditions, les équations de Maxwell (1) deviennent :

$$\left\{ \begin{array}{ll} k_x E_x + k_z E_z = 0 & k_x H_x + k_z H_z = 0 \\ -k_z E_y = \mu_0 \omega H_x & k_z H_y = \varepsilon_0 \varepsilon_r \omega E_x \\ k_z E_x - k_x E_z = \mu_0 \omega H_y & k_x H_z - k_z H_x = \varepsilon_0 \varepsilon_r \omega E_y \\ k_x E_y = \mu_0 \omega H_z & k_x H_y = -\varepsilon_0 \varepsilon_r \omega E_z \end{array} \right. \quad (4)$$

De même, l'équation de propagation (2) devient :

$$k_x^2 + k_z^2 - \frac{\varepsilon_r \omega^2}{c^2} = 0 \quad (5)$$

Nous allons maintenant étudier les conditions de propagation d'une onde évanescente des deux côtés d'une interface entre un milieu 1 de permittivité  $\varepsilon_1$  et un milieu 2 de permittivité  $\varepsilon_2$ . Cette interface est représentée sur la figure suivante :

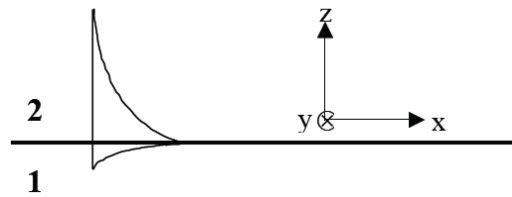


Figure 1 : Onde de surface à l'interface entre deux milieux.

Comme indiqué sur la Figure 1, l'onde se propage selon l'axe  $x$  donc  $k_x$  est un réel positif et est évanescente selon l'axe des  $z$  donc  $k_z$  est un imaginaire pur ( $k_z = i.k_z'$ ). De plus, dans le milieu 1,  $z$  est négatif donc  $k_z'$  est négatif alors que, dans le milieu 2,  $z$  est positif donc  $k_z'$  est positif.

Sur l'interface ( $z = 0$ ), d'après les équations de Maxwell, nous avons une continuité des composantes tangentielles des champs, d'où les relations suivantes :

$$\begin{cases} E_{x,0}^1 \exp i(k_x^1 x - \omega t) = E_{x,0}^2 \exp i(k_x^2 x - \omega t) \\ E_{y,0}^1 \exp i(k_x^1 x - \omega t) = E_{y,0}^2 \exp i(k_x^2 x - \omega t) \\ H_{x,0}^1 \exp i(k_x^1 x - \omega t) = H_{x,0}^2 \exp i(k_x^2 x - \omega t) \\ H_{y,0}^1 \exp i(k_x^1 x - \omega t) = H_{y,0}^2 \exp i(k_x^2 x - \omega t) \end{cases} \quad (6)$$

Ces conditions à l'interface nous donnent les relations suivantes :

$$\begin{cases} E_{x,0}^1 = E_{x,0}^2 = E_{x,0} & E_{y,0}^1 = E_{y,0}^2 = E_{y,0} \\ H_{x,0}^1 = H_{x,0}^2 = H_{x,0} & H_{y,0}^1 = H_{y,0}^2 = H_{y,0} \\ k_x^1 = k_x^2 = k_x \end{cases} \quad (7)$$

En combinant l'équation (4) avec l'équation (7), nous obtenons :

$$\left\{ \begin{array}{l} k_z^1 E_{z,0}^1 = k_z^2 E_{z,0}^2 = -k_x E_{x,0} \\ k_z^1 E_{y,0} = k_z^2 E_{y,0} = -\mu_0 \omega H_{x,0} \\ k_z^1 E_{x,0} - k_x E_{z,0}^1 = k_z^2 E_{x,0} - k_x E_{z,0}^2 = \mu_0 \omega H_{y,0} \\ H_{z,0}^1 = H_{z,0}^2 = (k_x / \mu_0 \omega) E_{y,0} \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} k_z^1 H_{z,0}^1 = k_z^2 H_{z,0}^2 = -k_x H_{x,0} \\ (k_z^1 / \varepsilon_1) H_{y,0} = (k_z^2 / \varepsilon_2) H_{y,0} = \varepsilon_0 \omega E_{x,0} \\ (k_x H_{z,0}^1 - k_z^1 H_{x,0}) / \varepsilon_1 = (k_x H_{z,0}^2 - k_z^2 H_{x,0}) / \varepsilon_2 = \varepsilon_0 \omega E_{y,0} \\ \varepsilon_1 E_{z,0}^1 = \varepsilon_2 E_{z,0}^2 = -(k_x / \varepsilon_0 \omega) H_{y,0} \end{array} \right. \quad (8)$$

Supposons dans un premier temps que  $E_{y,0}$  soit non nul. Nous déduisons les relations suivantes des 2 premières lignes de (8) :

$$\left\{ \begin{array}{l} k_z = k_z^1 = k_z^2 = -\frac{\mu_0 \omega H_{x,0}}{E_{y,0}} \\ E_{z,0} = E_{z,0}^1 = E_{z,0}^2 = -\frac{k_x}{k_z} E_{x,0} \\ H_{z,0} = H_{z,0}^1 = H_{z,0}^2 = -\frac{k_x}{k_z} H_{x,0} \\ H_{y,0} = E_{x,0} = 0 \end{array} \right. \quad (9)$$

L'autre relation contenant  $E_{y,0}$  provenant de la 3<sup>ème</sup> ligne de (8) devient :

$$(k_x H_{z,0} - k_z H_{x,0}) / \varepsilon_1 = (k_x H_{z,0} - k_z H_{x,0}) / \varepsilon_2 = \varepsilon_0 \omega E_{y,0} \quad (10)$$

Or, sachant que  $\varepsilon_1 \neq \varepsilon_2$  et que  $E_{y,0} \neq 0$ , cette équation devient sans solution. La propagation d'une onde de surface nécessite donc que  $E_{y,0}$  soit nul. Une onde de surface ne peut donc pas être excitée par une polarisation TE. Cela explique le premier point : **un plasmon de surface est excité par une polarisation TM.**

Dorénavant, nous supposons que  $E_{y,0} = 0$ . Les relations (8) deviennent :

$$\left\{ \begin{array}{l} k_z^1 E_{z,0}^1 = k_z^2 E_{z,0}^2 = -k_x E_{x,0} \\ H_{x,0} = 0 \\ k_z^1 E_{x,0} - k_x E_{z,0}^1 = k_z^2 E_{x,0} - k_x E_{z,0}^2 = \mu_0 \omega H_{y,0} \\ H_{z,0}^1 = H_{z,0}^2 = 0 \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} 0 = 0 = 0 \\ (k_z^1 / \varepsilon_1) H_{y,0} = (k_z^2 / \varepsilon_2) H_{y,0} = \varepsilon_0 \omega E_{x,0} \\ 0 = 0 = 0 \\ \varepsilon_1 E_{z,0}^1 = \varepsilon_2 E_{z,0}^2 = -(k_x / \varepsilon_0 \omega) H_{y,0} \end{array} \right. \quad (11)$$

Cela nous conduit à l'équation caractéristique d'une onde de surface entre deux milieux :

$$\frac{k_z^1}{k_z^2} = \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2} \quad (12)$$

Comme expliqué précédemment, sachant que  $k_z = i.k'_z$  et que  $k'_z{}^1$  et  $k'_z{}^2$  sont de signes opposés, cela implique que les permittivités des deux milieux doivent elles aussi être de signe opposé. Cela explique le deuxième point : **un plasmon de surface ne peut être excité qu'entre un milieu métallique et un milieu diélectrique.**

Nous allons maintenant calculer la composante longitudinale  $k_x$  du vecteur d'onde de surface dans les conditions limites à l'interface (7).

$$\begin{cases} k_x^2 = \varepsilon_1 \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 - (k_z^1)^2 \\ k_x^2 = \varepsilon_2 \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 - (k_z^2)^2 \end{cases} \quad (13)$$

Alors nous obtenons la valeur de  $k_{SP}$  sous la forme suivante.

$$k_{SP}^2 = \left( \frac{\varepsilon_m \cdot \varepsilon_d}{\varepsilon_m + \varepsilon_d} \right) \cdot \left( \frac{\omega}{c} \right)^2 \quad (14)$$

avec  $\varepsilon_m = \varepsilon_1$  la permittivité du milieu métallique et  $\varepsilon_d = \varepsilon_2$  la permittivité du diélectrique. Pour les métaux, la permittivité est complexe et peut s'écrire sous la forme  $\varepsilon_m = \varepsilon'_m + i\varepsilon''_m$ . Dans le cas où  $\varepsilon'_m \gg \varepsilon''_m$ , nous pouvons approximer  $k_{SP}$  de la manière suivante :

$$k_{SP} = \sqrt{\frac{\varepsilon'_m \cdot \varepsilon_d}{\varepsilon'_m + \varepsilon_d}} \cdot \frac{\omega}{c} \quad (15)$$

## Références bibliographiques.

---

- [ABP97] M. Aeschlimann, M. Bauer, S. Pawlik, W. Weber, R. Burgermeister, D. Oberli, H.C. Siegmann, “Ultrafast Spin-Dependent Electron Dynamics in fcc Co,” *Phys. Rev. Lett.* 79, 5158 (1997).
- [AKP74] S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, and T. L. Perelman, “Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses,” *Sov. Phys. JETP.* 39, 375 (1974).
- [AM76] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, “Solid State Physics,” Holt. Rinehart and Winston. New York. (1976).
- [APW06] T. Ao, Y. Ping, K. Widmann, D. F. Price, E. Lee, H. Tam, P. T. Springer, and A. Ng, “Optical Properties in Nonequilibrium Phase Transitions,” *Phys. Rev. Lett.* 96, 055001 (2006).
- [Aud07] E. Audouard. Procédé et dispositif de marquage d’une surface nanostructures périodiques contrôlées. Brevet n° 07 06427 (2007).
- [AZI06] S.I. Anisimov, V.V. Zhakhovskii, N.A. Inogamov, K. Nishihara, Y.V. Petrov, and V.A. Khokhlov, “Ablated matter expansion and crater formation under the action of ultrashort laser pulse,” *JETP.* 103, 183 (2006).
- [BBK02] J. Bonse, S. Baudach, J. Krüger, W. Kautek, and M. Lenzner, “Femtosecond laser ablation of silicon-modification thresholds and morphology,” *Appl. Phys. A.* 74, 19 (2002).
- [BDE03] W. Barnes, LA. Dereux, TW. Ebbesen, “Surface plasmon subwavelength,” *opt. Nat.* 424, 824-830 (2003).
- [BDF00] M. Bonn, D. N. Denzler, S. Funk, M. Wolf, “ Ultrafast electron dynamics at metal surfaces: Competition between electron-phonon coupling and hot electron transport,” *Phys. Rev. B.* 61, 1101 (2000).
- [BH03] A. Borowiec and H. K. Haugen, “Subwavelength ripple formation on surfaces of compound semiconductors irradiated with femtosecond laser pulses,” *Appl. Phys. Lett.* 82, 4462-4464 (2003).
- [BH88] R.M. Bradley and J.M.E. Harper, “Theory of ripple topography induced by ion bombardment,” *J. Vac. Sci. Technol. A* 6, 2390 (1988).
- [Bil06] Pierre BILLAUD, “Propriétés optiques de nanoparticules uniques de métaux nobles,” thèse université Lyon 1 (2006).

## Bibliographie.

- [Bir65] M. Birnbaum, "Semiconductor surface damage produced by ruby lasers," *J. Appl. Phys.* 36, 3688–3689 (1965).
- [BL93] M. Bolle and S. Lazare, "Characterisation of submicrometer periodic structures produced on polymer surfaces with low-fluence ultraviolet laser radiation," *J. Appl. Phys.* 73, 3516 (1993).
- [BMS05] J. Bonse, M. Munz and H. Sturm, "Structure formation on the surface of indium phosphide irradiated by femtosecond laser pulses," *J. Appl. Phys.* 97, 013538 (2005).
- [Bon06] Clément Bonnard, "Couplage fort entre plasmons de surface et excitons de semiconducteur organique," thèse université Claude Bernard Lyon (2006).
- [BRK09] J. Bonse, A. Rosenfeld, J. Kruger, "On the role of surface plasmon polaritons in the formation of laser-induced periodic surface structures upon irradiation of silicon by femtosecond laser pulses," *J. Appl. Phys.* 106, 104910 (2009).
- [BRK11] J. Bonse, A. Rosenfeld, J. Kruger, "Implications of transient changes of optical and surface properties of solids during femtosecond laser pulse irradiation to the formation of laser-induced periodic surface structures," *Appl. Surf. Sci.* 257, 5420-5423 (2011).
- [BSS00] J. Bonse, H. Sturm, D. Schmidt, and W. Kautek, "Chemical, morphological and accumulation phenomena in ultrashort-pulse laser ablation of TiN in air," *Appl. Phys. A* 71, 657-665 (2000).
- [BW99] Max Born and Emil Wolf, "Electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light," *Principles of optics* Cambridge university press, 40 west 20th svenue, New-York (1999)
- [CBS88] P.B. Corkum, F. Brunel, N.K. Sherman, and T. Srinivasan-Rao, "Thermal Response of Metals to Ultrashort-Pulse Laser Excitation," *Phys. Rev. Lett.* 61, 2886 (1988).
- [CCB06] E. Chason, W. L. Chan, and M. S. Bharathi, "Kinetic monte carlo simulations of ion induced ripple formation : Dependence on flux, temperature, and defect concentration in the linear regime," *Phys Rev. B*, 74(22) :224103, (2006).
- [CER06] F. Costache , S. Eckert, J. Reif, "Dynamics of laser-induced desorption from dielectric surfaces on a sub-picosecond timescale" *Appl Surf Sci.* 252, 4416–4419 (2006).

## Bibliographie.

- [CGF11] J.P. Colombier, F. Garrelie, N. Faure, S. Reynaud, M. Bounhalli, E. Audouard, R. Stoian and F. Pigeon, “Effects of electron-phonon coupling and electron diffusion on ripples growth on ultrafast-laser-irradiated metals,” *Accepté dans J. App. Phys* (2011).
- [CH07] T. H. R. Crawford and H. K. Haugen, “Sub-wavelength surface structures on silicon irradiated by femtosecond laser pulses at 1300 and 2100 nm wavelengths,” *Appl. Surf. Sci.* 253, 4970–4977 (2007).
- [CHR02] F. Costache, M. Henyk, and J. Reif, “Modification of dielectric surfaces with ultra-short laser pulses,” *Appl. Surf. Sci.* 186, 352-357 (2002).
- [CHR03] F. Costache, M. Henyk, and J. Reif, “Surface patterning on insulators upon femtosecond laser ablation,” *Appl. Surf. Sci.* 208, 486-491 (2003).
- [CKR04] F. Costache, S. Kouteva-Arguirova, and J. Reif, “Sub-damage-threshold femtosecond laser ablation from crystalline silicon: surface nanostructures and phase transformation,” *Appl. Phys. A.* 79, 1429 (2004).
- [CKR04] F. Costache, S. Kouteva-Arguirova, and J. Reif, “Sub-damage-threshold femtosecond laser ablation from crystalline Si: surface nanostructures and phase transformation” *Appl. Phys. A* 79, 1429 (2004).
- [CMB01] M. Csete, O. Marti, and Zs. Bor, “Laser-induced periodic surface structures on different-poly-carbonate films,” *Appl. Phys. A* 73, 521 (2001).
- [Cos06] F. A. Costache “Dynamics of Ultra-short Laser Pulse Interaction with Solids at the Origin of Nanoscale Surface Modification,” *thèse université Brandenburgischen Technischen Cottbus* (2006).
- [DKK04] G. Daminelli, J. Krüger, and W. Kautek, “Femtosecond laser interaction with silicon under water confinement,” *Thin Solid Films* 467, 334-341 (2004).
- [DM04] Y. Dong and P. Molian, “Coulomb explosion-induced formation of highly oriented nanoparticles on thin films of 3C-SiC by the femtosecond pulsed laser,” *Appl. Phys. Lett.* 84, 10-12 (2004).
- [DRD09] D. Dufft, A. Rosenfeld, S. K. Das, R. Grunwald, and J. Bonse “Femtosecond laser-induced periodic surface structures revisited: A comparative study on ZnO,” *J. Appl. Phys.* 105, 034908 (2009).
- [DRW02] G. Dumitru, V. Romano, H.P. Weber, S. Pimenov, M. Sentis, W. Marine “Femtosecond ablation of ultrahard materials”, *Appl. Phys. A* 74, 729-739 (2002).

## Bibliographie.

- [EHW73] D. Emmony, R. Howson and L. Willis, "Laser mirror damage in germanium at 10.6 nm," *Appl. Phys. Lett.* 23, 598 (1973).
- [Emm04] Emmanuel Maillart, "Développement d'un système optique d'imagerie en résonance des plasmons de surface pour l'analyse simultanée de multiples interactions biomoléculaires en temps réel," Thèse (2004).
- [EMS00] K. Eidmann, J. Meyer-ter-Vehn, and T. Schlegel, "Hydrodynamic simulation of subpicosecond laser interaction with solid-density matter," *Phys. Rev. E* 62, 1202 (2000).
- [FLI84] J. G. Fujimoto, J. M. Liu, E. P. Ippen, and N. Bloembergen, "Femtosecond Laser Interaction with Metallic Tungsten and Nonequilibrium Electron and Lattice Temperatures," *Phys. Rev. Lett.* 53, 1837 (1984).
- [FST92] W.S. Fann, R. Storz, H.W.K. Tom, J. Bokor, "Direct measurement of nonequilibrium electron-energy distributions in subpicosecond laser-heated gold films," *Phys. Rev. Lett.* 68, 2834 (1992).
- [GCP11] F. Garrelie, J.P. Colombier, F. Pigeon, S. Tonchev, N. Faure, M. Bounhalli, S. Reynaud and O. Parriaux, "Evidence of surface plasmon resonance in ultrafast laser-induced ripples," *Opt. Exp.* 19, 9035 (2011).
- [GES91] P. Georges, F. Estable, F. Salin, J.P. Poizat, P. Grangier and A. Brun, "High-efficiency multipass Ti:sapphire amplifiers for a continuous-wave single-mode laser," *Opt. Lett.* 16, p. 144. (1991).
- [GFS82] Z. Guosheng, P. M. Fauchet and A. E. Siegman, "Growth of spontaneous periodic surface structures on solids during laser illumination," *Phys. Rev. B* 26, 5366-5381 (1982).
- [GGS07] M. Guillermin, F. Garrelie, N. Sanner, E. Audouard, and H. Soder, "Single- and multi- pulse formation of surface structures under static femtosecond irradiation," *Appl. Surf. Sci.* 253, 8075 (2007).
- [Gra72] D. E. Gray, *American Institute of Physics Handbook, Third Edition*, McGraw Hill, New York, (1972).
- [GS97] G.K. Giust and T.W. Sigmon, "New ripple patterns observed in excimer-laser irradiated SiO<sub>2</sub>/polycrystalline silicon/SiO<sub>2</sub> structures," *Appl. Phys Lett.* 70, 3552 (1997).
- [Gui09] M. Guillermin, "Etude du panache d'ablation laser femtoseconde, contrôle et optimisation des procédés," Thèse, Université Jean Monnet de Saint-Etienne (2006).



## Bibliographie.

- [GVR09] M. Gedvilas, B. Voisiat, G. Raciukaitis, K. Regelskis, "Self-organization in thin metal films after irradiation with nanosecond laser pulses," *Applied Surface Science* 255, 9826 (2009).
- [HBW05] R. Le Harzic, D. Breitling, M. Weikert, S. Sommer, C. Föhl, S. Valette, C. Donnet, E. Audouard and F. Dausinger "Pulse width and energy influence on laser micromachining of metals in a range of 100 fs to 5 ps," *Appl. Surf. Sci.* 249, 1-4, 322-331(2005).
- [HKN07] P. E. Hopkins, J. M. Klopff, and P. M. Norris, "Influence of interband transitions on electron-phonon coupling measurements in Ni films," *Appl. Opt.* 46, 2076-2083 (2007).
- [HQ10] Y. Han, S. Qu, "The ripples and nanoparticles on silicon irradiated by femtosecond laser," *Chem. Phys. Lett.* 495(4-6), 241–244 (2010).
- [HVG09] T. Y. Hwang, A. Y. Vorobyev, and C. Guo, "Ultrafast dynamics of femtosecond laser-induced nanostructure formation on metals," *Appl. Phys. Lett.* 95, 123111 (2009).
- [HWG00] J. Hohlfeld, S. S. Wellershoff, J. Gudde, U. Conrad, V. Jahnke, E. Matthias, "Electron and lattice dynamics following optical excitation of metals," *Chem. Phys.* 251. 237-258 (2000).
- [HZC09] M. Huang, F. Zhao, Y. Cheng, N. Xu and Z. Xu, "Origin of laser-induced near-subwavelength LIPSS: interference between surface plasmons and incident laser," *ACS Nano* 3(12), 4062-4070 (2009).
- [Ise77] N. R. Isenor, "Co<sub>2</sub> laser-produced ripple patterns on nixp<sub>1-x</sub> surfaces," *Appl. Phys. Lett.* 31, 148-150 (1977).
- [JBW88] Yong Jee, Michael F. Becker, and Rodger M. Walse, "Laser-induced damage on single-crystal metal surfaces," *J. Opt. Soc.* 5, 3 (1988)
- [JCH05] T. Q. Jia, H. X. Chen, M. Huang, F. L. Zhao, J. R. Qiu, R. X. Li, Z. Z. Xu, X. K. He, J. Zhang, and H. Kuroda, "Formation of nanogratings on the surface of a ZnSe crystal irradiated by femtosecond laser pulses," *Phys. Rev. B* 72, 125429 (2005).
- [JGL02] H.O. Jeschke, M.E. Garcia, M. Lenzner, J. Bonse, J. Krüger, W. Kautek, "Laser ablation thresholds of silicon for different pulse durations: theory and experiment," *Appl. Surf. Sci.* 197-198, 839 (2002).

## Bibliographie.

- [KAE00] F. Korte, S. Adams, A. Egbert, C. Fallnich, A. Ostendorf, S. Nolte, M. Will, J.-P. Ruske, B. N. Chichkov, and A. Tünnermann, "Sub-diffraction limited structuring of solid targets with femtosecond laser pulses," *Opt. Exp.* 7, 41-49 (2000).
- [KK99] J. Krüger and W. Kautek, "Femtosecond-pulse visible laser processing of transparent materials," *Appl. Surf. Sci.* 96-98, 430 (1999).
- [KNC08] J. Kim, S. Na, S. Cho, W. Chang, and K. Whang, "Surface ripple changes during Cr film ablation with a double ultrashort laser pulse" *Opt. Laser. Eng.* 46, 30 (2008).
- [KRN68] E. Kretschmann, H. Raether, *Z. Naturforsch.* 23A, 2135 (1968).
- [KS76] J.C. Koo and R.E. Slusher, "Diffraction from laser-induced deformation on reflective surfaces," *Appl. Phys. Lett.* 28, 614 (1976).
- [Leh03] R. Le Harzic, "Etude des procédés laser femtoseconde pour le micro-usinage à effets thermiques limités," Thèse, Université Jean Monnet de Saint-Etienne, (2003).
- [LP81] E. M. Lifshitz and L. P. Pitaevskii, "Physical Kinetics," Pergamon Press, Oxford, 1981.
- [LS01] P. Laporte et F. Salin "Systèmes femtoseconde," Collection Intégration, Publications de l'Université de Saint-Etienne (2001).
- [LZ08] Z. Lin and L. V. Zhigilei "Electron-phonon coupling and electron heat capacity of metals under conditions of strong electron-phonon non-equilibrium," *Phy. Rev. B.* 77, 075133 (2008).
- [MK06] HT. Miyazaki, Y. Kurokawa, "Squeezing visible light waves into a 3-nm-thick and 55-nm-long plasmon cavity," *Phys. Rev. Lett.* 96, 09740 (2006).
- [MMC04] P. T. Mannion, J. Magee, E. Coyne, G. M. O'Connor, and T. J. Glynn, "The Effect of Damage Accumulation Behaviour on Ablation Thresholds and Damage Morphology in Ultrafast Laser Micro-Machining of Common Metals in Air," *Appl. Surf. Sci.* 233, 275-287 (2004).
- [Mon05] Antoine Monmayrant, "Façonnage et caractérisation d'impulsion ultracourtes contrôle cohérent de système simple," thèse de l'université de Toulouse III (2005).

## Bibliographie.

- [NMJ97] S. Nolte, C. Momma, H. Jacobs, A. Tünnermann, B. N. Chichkov, B. Wellegehausen, and H. Welling, "Ablation of metals by ultrashort laser pulses," *J. Opt. Soc. Am. B.* 14, 2716 (1997).
- [OHM10] K. Okamuro, M. Hashida, Y. Miyasaka, Y. Ikuta, S. Tokita, and S. Sakabe, "Laser fluence dependence of periodic grating structures formed on metal surfaces under femtosecond laser pulse irradiation," *Phys. Rev. B.* 82, 165417 (2010).
- [OS79] M. Oron and G. Sorensen, "New experimental evidence of the periodic surface structure in laser annealing," *Appl. Phys. Lett.* 35, 782-784 (1979).
- [Ott68] A. Otto, "Excitation of surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection," *Z. Physik*, 216, 398-410 (1968).
- [Ozb06] E. Ozbay, "Nanoscale dimensions plasmonics : merging photonics and electronics at nanoscale dimensions," *Ekmel Ozbay in Science.* 311, 189-193 (2006).
- [Pal85] Handbook of optical constants of solids, ED Palik Academic, New York (1985).
- [PCF97] J.P. Pérez, R. Carles et R. Fleckiner, "Electromagnétisme : Fondements et applications," Masson, 3eme édition (1997)
- [Pet05] G. Petite, "Mécanismes fondamentaux de l'ablation laser femtoseconde en flux intermédiaire, laser et technologies femtoseconde," édité par M. Sentis and O. Uteza publications de l'Université de Saint-Etienne, 319 (2005).
- [Pou07] Y. Poujet, "transmission exaltée à travers des tamis à photons à ouvertures annulaires nanométriques : simulation et caractérisation," thèse université de Franche-Comté (2007).
- [RAC68] R.H. Ritchie, E.T. Arakawa, J.J. Cowan and R.N. Hamm, "Surface-Plasmon Resonance Effect in Grating Diffraction," *Phys. Rev. Lett.* 21, 1530 (1968).
- [RCV09] J. Reif, F. Costache, O. Varlamova, G. Jia, and M. Ratzke, "Self-organized regular surface patterning by pulsed laser ablation," *Phys. Stat. Soli. C.* 6, 681 (2009).
- [Rei06] J. Reif, "Basic Physics of Femtosecond Laser Ablation" Springer series in materials science. Chapter 2 (2006).
- [RHM09] G.R.B.E. Romer, A.J. Huisint Veld, J. Meijer, M.N.W. Groenendijk "On the formation of laser induced self-organizing nanostructures" *CIRP Annals Manufacturing Technology.* 58, 201-204 (2009).

## Bibliographie.

- [RHS07] L. Röntzsch, K. H. Heinig, J. A. Schuller, and M. L. Brongersma, "Thin film patterning by surface-plasmon-induced thermocapillarity," *Appl. Phys. Lett.* 90, 044105 (2007)
- [RK04] P. Rudolf and W. Kautek, "Composition influence of non-oxidic ceramics on self-assembled nanostructures due to fs-laser irradiation," *Thin Solid Films.* 453, 537-541 (2004).
- [RLS99] A. Rosenfeld, M. Lorenz, R. Stoian, D. Ashkenasi, "Ultrashort-laser-pulse damage threshold of transparent materials and the role of incubation," *Appl. Phys. A.* 69, 737 (1999).
- [SAP94] R. Serna, C.N. Alfonso, A.K. Petford-Long, and N.J. Long, "Structural ripple formation in Ge/Sb multilayers induced by laser irradiation," *Appl. Phys. A.* 58, 197 (1994).
- [SBJ95] C. Suarez, W. E. Bron, T. Juhasz, "Dynamics and Transport of Electronic Carriers in Thin Gold Films" *Phys. Rev. Lett.* 75, 4536 (1995).
- [SGL87] F. Salin, P. Georges, G. Le Saux, G. Roger et A. Brun, "Autocorrélation interférométrique monocoup d'impulsions femtosecondes," *Rev. Phys. Appl.* 22, 1613-1618 (1987).
- [SHA05] N. Sanner, N. Huot, E. Audouard, C. Larat, J.-P. Huignard, and B. Loiseaux, "Programmable focal spot shaping of amplified femtosecond laser pulses," *Opt. Lett.* 30, 1479-1481 (2005).
- [SHB00] V. Schmidt, W. Husinsky, G. Betz, "Dynamics of laser desorption and ablation of metals at the threshold on the femtosecond time scale" *Phys. Rev. Lett.* 85, 3516 (2000).
- [SHB02] V. Schmidt, W. Husinsky, G. Betz, "Ultrashort laser ablation of metals: pump-probe experiments, the role of ballistic electrons and the two-temperature model," *Appl. Surf. Sci.* 197-198, 145-155 (2002)
- [SHT08] T. Sarnet, M. Halbax, R. Torres, P. Delaporte, M. Sentis, S. Martinuzzi, V. Vervisch, F. Torregrosa, H. Etienne, L. Roux, and S. Bastide, "Femtosecond laser for black silicon and photovoltaic cells," *Proc. SPIE.* 6881, 688119 (2008)
- [SL00] K. Sokkolowsky et D.V.D Linde, "Generation of dense electronhole plasmas in silicon". *Phys. Rev. B.* 61, 2643-2650 (2000).
- [SYP83] J. Sipe, J. Young, J. Preston, and H. Driel, "Laser-induced periodic surface structure. I. Theory," *Phys. Rev. B.* 27, 1141 (1983).

## Bibliographie.

- [TBL95] P. Tosin, A. Blatter and W. Luethy, "Laser-induced surface structures on diamond films," *J. Appl. Phys.* 78, 3797 (1995).
- [TKM06] T. Tomita, K. Kinoshita, S. Matsuo, and S. Hashimoto, "Distinct Fine and Coarse ripples on 4H-SiC Single Crystal Induced by Femtosecond Laser Irradiation," *Jpn. J. Appl. Phys.* 45, 444-446 (2006).
- [TS81] P. Temple and M. Soileau, "Polarization charge model for laser-induced ripple patterns in dielectric materials," *IEEE. J. Quant. Elec.* 17, 2067 (1981).
- [Var11] O. Varlamova, Communication privée.
- [VCR06] O. Varlamova, F. Costache, J. Reif, and M. Bestehorn, "Self-organized pattern formation upon femtosecond laser ablation by circularly polarized light," *Appl. Surf. Sci.* 252, 4702-4706 (2006).
- [VCR07] O. Varlamova, F. Costache, M. Ratzke, J. Reif, "Control parameters in pattern formation upon femtosecond laser ablation," *Appl. Surf. Sci.* 253, 7932-7936 (2007).
- [VD96] A.A.Voevodin and M.S. Donley, "Preparation of amorphous diamond-like carbon by pulsed laser deposition: a critical review," *Surf. Coat. Technol.* 82, 199-213 (1996).
- [VG06] A.Y. Vorobyev and Chunlei Guo "Femtosecond laser nanostructuring of metals" *Opt. Exp.* 14, 2164-2169 (2006).
- [VMG07] A. Y. Vorobyev, V. S. Makin, and C. Guo, "Periodic ordering of random surface nanostructures induced by femtosecond laser pulses on metals," *J. Appl. Phys.* 101, 034903 (2007).
- [WAB07] M.Wollenhaupt, A. Assion, and T. Baumert, "Femtosecond laser pulses: Linear properties, manipulation, generation and measurement," *Handbook of Lasers and Opt. Spri.* New York. Chapter 12 (2007).
- [Wei00] A. M. Weiner, "Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators. *Review of Scientific Instruments*," 71, 1929-1960 (2000).
- [WES98] A. Wanknerl, D.T. Emerson and J.R. Shealy, "Submicron selective organometallic vapor phase epitaxy growth using tunable deep UV excitation," *Appl. Phys. Lett.* 72, 1614 (1998).
- [WG05] J. Wang and C. Guo, "Ultrafast dynamics of femtosecond laser-induced surface pattern formation on metals," *Appl. Phys. Lett.* 87, 251914 (2005).

## Bibliographie.

- [WG06] J. Wang, and C. Guo, "Formation of extraordinarily uniform periodic structures on metals induced by femtosecond laser pulses," *J. Appl. Phys.* 100, 023511 (2006).
- [WG07] R. Wagner and J. Gottmann, "Sub-wavelength ripple formation on various materials induced by tightly focused femtosecond laser radiation," *J. Phys. Conf. Ser.* 59, 333 (2007).
- [WH85] R. J. Wilson and F. A. Houle, "Composition, Structure, and Electric Field Variations in Photodeposition," *Phys. Rev. Lett.* 55, 2184 (1985).
- [WHG99] S.-S. Wellershoff, J. Hohlfeld, J. Gudde, E. Matthias, "The role of electron-phonon coupling in femtosecond laser damage of metals," *Appl. Phys. A.* 69, 99 (1999).
- [WLN05] X. C. Wang, G. C. Lim, F. L. Ng, W. Liu, and S. J. Chua, "Femtosecond pulsed laser-induced periodic surface structures on GaN/sapphire," *Appl. Surf. Sci.* 252, 1492-1497 (2005).
- [YBP06] W. Yang, E. Bricchi, P. G. Kazansky, J. Bovatsek, and A. Y. Arai, "Self-assembled periodic sub-wavelength structures by femtosecond laser direct writing," *Opt. Exp.* 14, 10117-10124 (2006).
- [YMK03] N. Yasumaru, K. Miyazaki, and J. Kiuchi, "Femtosecond-laser-induced nanostructure formed on hard thin films of TiN and DLC," *Appl. Phys. A.* 76, 983-985 (2003).
- [YMK04] N. Yasumaru, K. Miyazaki, and J. Kiuchi, "Glassy carbon layer formed in diamond-like carbon films with femtosecond laser pulses," *Appl. Phys. A.* 79, 425-427 (2004).
- [YMK05] N. Yasumaru, K. Miyazaki and J. Kiuchi, "Fluence dependence of femtosecond-laser-induced nanostructure formed on TiN and CrN," *Appl. Phys. A.* 81, 933-937 (2005).
- [YPV83] J. F. Young, J. S. Preston, H.M. Van Driel and J. E. Sipe, "Laser-induced periodic surface structures. II. Experiments on Ge, Si, Al, and brass," *Phys. Rev. B.* 27, 1155-1172 (1983).
- [ZFS82] G. Zhou, P. Fauchet, and A. Siegman, "Growth of spontaneous periodic surface structures on solids during laser illumination," *Phys. Rev. B.* 26, 5366 (1982).

## Bibliographie.

- [ZNN08] V. V. Zhakhovskii, N. A. Inogamov and K. Nishihara, “New Mechanism of the Formation of the Nanorelief on a Surface Irradiated by a Femtosecond Laser Pulse,” *JETP. Lett.* 87, 423-427 (2008).
- [ZMW07] Q. Z. Zhao, S. Malzer, and L. J. Wang, “Formation of subwavelength structures on tungsten induced by ultrashort laser pulses,” *Opt. Lett.* 32, 1932–1934 (2007).

# **Dynamique de la formation des nanostructures périodiques par impulsions laser ultra-brèves sur une surface métallique**

## Résumé :

La surface d'un matériau exposé à une irradiation laser à une fluence proche de son seuil d'ablation laisse apparaître des structures périodiques LIPSS (Laser Induced Periodic Surface Structure) d'orientation dépendant de la polarisation de faisceau incident et dont la période est de l'ordre de la longueur d'onde. Les causes de ce phénomène qui suscite l'attention des chercheurs depuis plus d'une trentaine d'années sont maintenant bien connues. Cependant, son étude dans le cadre de l'utilisation récente de lasers à impulsions ultra-brèves fait surgir de nouvelles interrogations et relance l'intérêt pour le sujet.

Ce travail est consacré à l'étude dynamique de la formation des nanostructures sur une surface métallique suite à une interaction laser femtoseconde. Nous nous intéressons aux mécanismes responsables de la formation de ces structures et nous proposons des explications permettant de comprendre leur origine.

Dans le premier chapitre on présente une étude de l'état de l'art sur la formation des LIPSS, on y aborde les paramètres influant sur la formation de ces structures ainsi que les différents modèles explicatifs élaborés par les chercheurs. Ce chapitre traite également de l'interaction laser matière et de ses différents processus. Le deuxième chapitre met l'accent sur les dispositifs expérimentaux réalisés dans ce cadre. Le troisième chapitre présente, quant à lui une étude expérimentale permettant de rendre compte du rôle de l'excitation du plasmon de surface dans la formation de LIPSS. Dans le quatrième chapitre on analyse les résultats relatifs à l'influence du couplage électron phonon sur la formation des LIPSS. Enfin, le cinquième et dernier chapitre met en évidence le rôle de la relaxation électron-phonon sur la formation des LIPSS à l'aide d'une expérience pompe-sonde.

Mots clés : Laser femtoseconde ; LIPSS ; Plasmons ; Mise en forme d'impulsion ; Pompe sonde.

## **Dynamics of periodic nanostructure formation on metal surfaces by ultrashort laser pulses**

### Abstract:

When a material is irradiated with laser fluency close to its ablation threshold, periodic surface structures LIPSS (Laser Induced Periodic Surface Structure) appears on its surface. These structures are dependent of the polarization vector of incident electric field and their periods are close to the laser wavelength. They have been extensively studied for more than thirty years, and their origins are quite well understood. However, the recent use of ultra-short laser sources has renewed the subject.

Present work is dedicated to the dynamics study of the nanostructures formation on a metal surface by femtosecond laser irradiation. We are interested in mechanisms responsible for the formation of these structures and we propose an explanation of their origin.

The first chapter presents a literature review on the formation of LIPSS. Here, the parameters affecting the formation of these structures as well as a different models developed by researchers will be discussed. This chapter also addresses the laser material interaction and its processes. The second chapter focuses on the experimental devices used in this context. The third chapter deals with the experimental study concerning the role of excitation of surface plasmon in the formation of LIPSS. In the fourth chapter, the results on the influence of electron phonon coupling on the formation of LIPSS are analyzed. Finally, the last chapter highlights the role of electron-phonon relaxation on the formation of LIPSS using pump-probe experiments.

Keywords: Femtosecond laser; LIPSS; Plasmons; Pulse shaping; Pump Probe.