



**HAL**  
open science

# Étude de la dynamique électronique des plasmas denses et tièdes par interférométrie optique

François Deneuville

► **To cite this version:**

François Deneuville. Étude de la dynamique électronique des plasmas denses et tièdes par interférométrie optique. Autre [cond-mat.other]. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2013. Français. NNT : 2013BOR14767 . tel-00826666

**HAL Id: tel-00826666**

**<https://theses.hal.science/tel-00826666>**

Submitted on 28 May 2013

**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.

N°d'ordre : 4767

# THÈSE

présentée à

## L'UNIVERSITÉ BORDEAUX 1

ÉCOLE DOCTORALE DE SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

par **François Deneuille**

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPÉCIALITÉ : Laser, Matière, Nanoscience

\*\*\*\*\*

**Étude de la dynamique électronique des plasmas denses et tièdes  
par interférométrie optique**

\*\*\*\*\*

Soutenue le : 28 Février 2013

Après avis de :

M. M. Sentis *Rapporteur*

M. L. Videau *Rapporteur*

Devant la commission d'examen formée de :

M. P. Audebert

M. C. Fourment *Co-directeur de thèse*

M. O. Peyrusse *Directeur de thèse*

M. M. Sentis *Rapporteur*

M. V. Tikhonchuk *Président du jury*

M. L. Videau *Rapporteur*



À mes parents,  
À Boris, Max et Gaby.

---

## Remerciements

Je remercie tout d'abord Philippe Balcou, directeur du CELIA, pour m'avoir accueilli dans son laboratoire, lieu de travail très plaisant. Avec sa terrasse très agréable exposée plein sud, le CELIA offre d'excellentes conditions de travail ! L'ambiance y est à la fois propice au travail et sympathique au quotidien. Le personnel est très compétent et les salles expérimentales sont de qualité.

Je tiens particulièrement à remercier Claude Fourment pour m'avoir encadré durant presque 4 ans, thèse plus stage de Master. Son perfectionnisme, sa pertinence d'esprit et son savoir faire m'ont été d'un grand soutien. J'ai, grâce à lui, acquis de nombreuses compétences en salle expérimentale. Je le remercie également pour sa disponibilité et ses conseils précieux.

Je remercie également Laurent Videau et Marc Sentis pour avoir été les rapporteurs de cette thèse. Ils ont fait un travail de qualité et leurs remarques constructives furent très appréciées.

Mes remerciements vont ensuite à Olivier Peyrusse pour avoir accepté d'être mon directeur de thèse officiel, pour sa sympathie et pour m'avoir présenté à Claude alors que je recherchais un stage et une thèse.

Un grand merci à Patrick Audebert pour avoir accepté de faire partie des membres du Jury mais également pour m'avoir invité à une collaboration internationale en Californie, expérience très enrichissante sur le point scientifique comme sur le plan personnel.

Je remercie Vladimir Tikhonchuk, d'une part pour avoir accepté de faire partie des membres du jury mais surtout pour sa disponibilité et ses réponses avisées à mes nombreux questionnements. Elles m'ont souvent permis de considérer un problème sous un angle nouveau.

Je suis très reconnaissant envers Benoit Chimier pour le travail qu'il a effectué, pour le temps qu'il m'a consacré, pour ses encouragements, ses compétences sur le sujet mais également pour sa disponibilité.

Je remercie Fabien Dorchies pour son formidable esprit de synthèse lors des répétitions orales, son humour et sa bonne humeur.

Un grand merci à tous les membres des groupes PETRUX et GOLF avec qui j'ai beaucoup interagi. Merci aux laseristes Dominique Descamp, Capucine Médina et Frédéric Burgy, qui nous fournissent le faisceau et sont à l'écoute des problèmes que l'on rencontre.

Merci à Céline et Emmanuelle pour la gestion du secrétariat, toujours là quand on a besoin d'elles et merci pour votre bonne humeur ! Merci à Loïc et Elodie pour la gestion des ordinateurs et du réseau, merci à Laurent et Alain pour toutes les pièces mécaniques qui proviennent de l'atelier !

Merci aux doctorants qui ont soutenu ou qui vont bientôt soutenir. Je pense particulièrement à ceux avec qui j'ai bien rigolé lors de nos soirées de travail au Celia, merci à Charles et bon courage, merci Hartmut, merci Ondrej, merci Pierre-Marie. Merci également à mes collègues de bureau Mathieu et Benjamin à qui je dois pas mal de code Matlab !

Merci à tous ceux avec qui je n'ai pas particulièrement travaillé mais qui m'ont apporté leur joie de vivre et avec qui j'ai passé de très bons moments. Merci à Sébastien, Joao, Stéphane, Rachel, Jean-Luc, Rémi, Fabrice, Mickaël, Dimitri, Marie-Christine.

# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>1 Interaction laser matière</b>	<b>9</b>
1.1 Modèle de la matière . . . . .	9
1.1.1 Plasma fortement couplé et matière dégénérée . . . . .	9
1.1.2 Les métaux . . . . .	15
1.2 Réponse d'un métal à une onde électromagnétique : La fonction diélectrique	20
1.2.1 Propagation d'une onde électromagnétique dans un milieu homogène	20
1.2.2 Le modèle de Drude . . . . .	22
1.2.3 L'oscillateur de Lorentz . . . . .	24
1.2.4 Le modèle de Drude-Lorentz . . . . .	26
1.2.5 Application aux métaux nobles . . . . .	27
1.3 Étude des collisions . . . . .	31
1.3.1 Plasma classique . . . . .	32
1.3.2 Domaine WDM . . . . .	33
1.3.3 Fréquence de collision électronique effective . . . . .	34
1.4 Dépôt de l'énergie . . . . .	36
1.5 Évolution de la température électronique . . . . .	38
1.5.1 Chauffage du nuage électronique . . . . .	38
1.5.2 Estimation de la température électronique . . . . .	39
<b>2 Méthode expérimentale</b>	<b>45</b>
2.1 Principe de la mesure . . . . .	46
2.1.1 Présentation générale de l'interférométrie dans le domaine des fréquences	46
2.1.2 Calcul du déphasage et de la réflectivité . . . . .	48
2.2 Montage expérimental en mode double impulsion . . . . .	53
2.2.1 Description générale . . . . .	53

2.2.2	Porte cible stabilisé . . . . .	55
2.3	Caractéristiques laser . . . . .	57
2.3.1	La chaine Aurore du CELIA . . . . .	57
2.3.2	Mesure du contraste temporel . . . . .	58
2.3.3	Compression des faisceaux et dispersion de vitesse de groupe à travers les optiques . . . . .	60
2.4	Voie sonde . . . . .	62
2.4.1	Réglage de l'interféromètre de Michelson . . . . .	62
2.4.2	Reprise d'image du faisceau sonde . . . . .	65
2.4.3	Le spectromètre . . . . .	74
2.4.4	Mélange de polarisation et réglage de l'angle du prisme de Wollaston	77
2.4.5	Pertinence des mesures spectrales . . . . .	79
2.4.6	Résolution en phase et réflectivité . . . . .	82
2.5	Voie pompe . . . . .	83
2.5.1	Focalisation de la pompe sur la cible . . . . .	83
2.5.2	Calcul de la fluence sur cible . . . . .	84
2.5.3	Mesure d'énergie absorbée . . . . .	84
2.5.4	Synchronisation de la ligne à retard pompe . . . . .	88
<b>3</b>	<b>Interprétation des mesures FDI</b>	<b>89</b>
3.1	Méthodologie pour retrouver les réflectivités complexes absolues . . . . .	89
3.2	Séparation des contributions diélectriques et hydrodynamiques . . . . .	92
3.2.1	Calcul d'indice optique et définition d'un critère . . . . .	93
3.2.2	Situation isochore . . . . .	95
3.2.3	Expansion sur-dense . . . . .	97
3.2.4	Expansion sous dense . . . . .	99
3.2.5	Résumé des types d'expansion. . . . .	106
3.3	Exemple d'interprétation qualitative de mesure sur du cuivre . . . . .	106
<b>4</b>	<b>Résultats Expérimentaux</b>	<b>111</b>
4.1	Les cibles . . . . .	112
4.1.1	Nature . . . . .	112
4.1.2	Caractérisation de la couche d'oxyde . . . . .	114
4.2	Étude de l'expansion hydrodynamique de l'aluminium . . . . .	116
4.2.1	Présentation des mesures . . . . .	116
4.2.2	Étude d'une in-homogénéité dans la cible . . . . .	119
4.2.3	Déplacement d'interface et simulation Esther . . . . .	122

4.3	Mesure de fonction diélectrique de l'or dans le régime WDM hors équilibre. . .	126
4.3.1	Présentation des résultats . . . . .	127
4.3.2	Retour sur le modèle de Drude Lorentz : Résolution . . . . .	133
4.3.3	Barres d'erreur sur le calcul de $\epsilon$ . . . . .	135
4.3.4	Évolution temporelle pour des fluences modérées . . . . .	137
4.3.5	Évolution en fonction de la fluence incidente immédiatement après le chauffage. . . . .	141
	<b>Conclusion</b>	<b>153</b>
	<b>A Le code ESTHER</b>	<b>157</b>



# Introduction

La Warm Dense Matter (WDM) traduit en français par Matière Dense et Tiède est souvent présentée comme un état de la matière se situant entre le solide et le plasma. Elle se caractérise par une densité proche de celle du solide, dans une gamme s'étalant de 0.1 à 10 fois la densité du solide et pour des températures allant de 0.1 à 100 eV. Alors que sa description se situe entre la physique des plasmas et la physique du solide, elle reste actuellement mal connue et requiert une description des transitions de phase. En particulier, les équations d'état reliant pression, température et densité demandent à être affinées dans ce régime par des mesures expérimentales.

On comprendra mieux la difficulté que représente la modélisation théorique de la WDM en faisant une simple application numérique. L'énergie d'une particule est la somme de son énergie cinétique et de son énergie potentielle. Pour les électrons, en moyenne par particule, l'énergie cinétique thermique s'écrit :

$$E_c = k_B T_e \quad (1)$$

avec  $k_B$  la constante de Boltzmann et  $T_e$  la température électronique. S'ajoute donc la contribution électrostatique, on considère l'interaction d'une particule avec son plus proche voisin séparé d'une distance  $d$ . L'énergie potentielle s'écrit :

$$E_p(d) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 d} \quad (2)$$

avec  $e$  la charge de l'électron et  $\epsilon_0$  la permittivité du vide. En prenant  $d = 1\text{\AA}$  pour se rapprocher des conditions du solide, l'égalité des énergies cinétiques et potentielles se fait à une température de 14 eV, soit typiquement l'ordre de grandeur de température du domaine d'intérêt : la température de Fermi. La description théorique de la WDM se trouve entre la physique du solide dominée par les interactions potentielles et la physique des plasmas, dominée par la cinétique comme présenté sur le schéma 1. Dans de telles conditions, la matière apparaît sous forme de plasma fortement couplé.

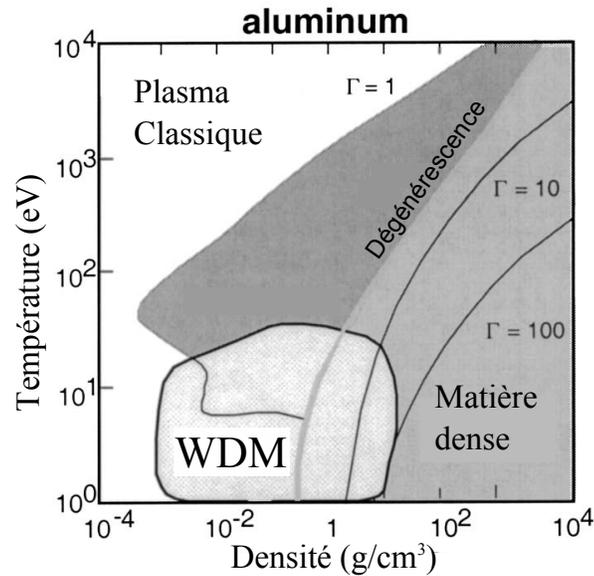


FIGURE 1 – Position du domaine WDM dans l'espace densité - température de l'aluminium [1].  $\Gamma$  est le paramètre de couplage.

## Pourquoi étudier la WDM ?

La raison la plus directe, voire la plus noble est sous-tendue par notre désir de prédire. Il est question de comprendre, de maîtriser, d'anticiper le comportement de la matière dans des conditions qui sortent du régime ordinaire. Connaître la réponse des matériaux sur de larges gammes de température et de pression, les temps de réponse à un stress, à une perturbation sur la base de modèles validés expérimentalement offrira aux personnes ingénieuses des bases solides pour la création de futures applications. De manière plus pragmatique, la description précise de cet état trouve des applications dans plusieurs domaines.

On citera la **planétologie** et plus particulièrement le cœur des planètes dans lesquelles peuvent régner des pressions supérieures à quelques dizaines de Mbar. En ce qui concerne les géantes gazeuses comme Saturne et Jupiter, les équations d'états de l'hydrogène et de l'hélium sont d'un intérêt majeur car ils représentent les éléments les plus abondants. Sous certaines conditions, l'hydrogène des géantes gazeuses se trouve sous forme métallique [2]. Par le biais d'une mesure de conductivité électrique, cette phase métallique a été observée par une équipe du Lawrence Livermore National Laboratory dans les années 1995 [3] à une pression de 1.4 Mbar.

Dans le domaine de la **fusion par confinement inertiel**, le régime de fusion se trouve à une température comprise entre 5 à 10 keV, à une pression de plusieurs centaines de Gbar pour une densité 1000 fois supérieure à celle du combustible à l'état solide. La capsule de

deutérium tritium passera par un état de WDM avant d'entrer en fusion.

La connaissance de la WDM trouve également des applications directes dans l'industrie. Nombreux sont les procédés industriels qui utilisent les lasers afin d'ablater de la matière pour réaliser des pièces de précision. On parle généralement d'**usinage laser**. La précision requise s'obtient par la connaissance de la masse ablatée, la profondeur d'ablation en fonction du dépôt d'énergie. Plusieurs mécanismes sont responsables de l'ablation, on trouvera les effets thermiques qui engendrent une transition de phase [4, 5], la fragmentation [6] liée aux contraintes mécaniques dans la matière qui forment des cavités atteignant des tailles macroscopiques. On trouve enfin un mécanisme électrostatique dans lequel les ions sont éjectés de la surface par un champ électrostatique. Ce dernier étant créé par des électrons chauds s'échappant de la cible [7, 8].

## Création de WDM en laboratoire

L'une des différences majeures entre la WDM à l'état naturel et la WDM en laboratoire est le temps de vie. Alors qu'elle est à l'état stable dans le cœur des planètes, il est difficile en laboratoire de maintenir de tels états sur des temps longs. Il sera question pour le physicien de porter les échantillons de matière à des températures de l'ordre de l'eV, éventuellement procéder à une compression et d'étudier la matière avant que cette dernière ne relaxe vers un état moins chaud et moins dense.

Le principe de base est d'apporter de l'énergie à un échantillon avant de procéder à une mesure. Une solution pour atteindre cet état de plasma couplé est d'utiliser des décharges électriques. Dans certains cas, la matière peut être confinée dans une enceinte de manière à connaître précisément la densité au cours de l'expérience. Il est alors possible d'en extraire la conductivité électrique par la mesure simultanée du courant et de la tension [9, 10]. Les temps de chauffage dans ce type d'expérience sont de l'ordre de plusieurs centaines de microsecondes soit des temps largement supérieurs aux temps d'équilibration, la matière peut être considérée comme étant à l'équilibre thermodynamique. Le confinement de la matière dans une enceinte est ici d'une grande importance, la transformation est isochore durant toute la durée de l'expérience et de plus, la matière sondée est homogène.

Au cœur du sujet de cette thèse, les lasers vont également permettre la création de WDM en laboratoire. C'est à Maiman [11], en 1960, que l'on doit la fabrication du premier laser optique. Les puissances en sortie de cavité n'en sont alors qu'au kilowatt. En 1965, les durées d'impulsions avoisinent les 4 nanosecondes grâce au blocage des modes dans la cavité par un absorbant saturable. Les puissances dépassent alors la centaine de mégawatts. Au

cours des trente dernières années, les technologies ont énormément évolué et l'on cherche à apporter un maximum d'énergie en un minimum de temps. Un grand pas est franchi suite à l'application de la technique d'amplification à dérive de fréquence [12] ("Chirped Pulse Amplification") issue de la recherche militaire sur les radars [13]. L'impulsion brève est étirée temporellement en retardant les différentes composantes spectrales. Elle est ensuite amplifiée dans un matériau à large bande spectrale avant d'être re-comprimée en passant, comme pour l'étirement, au travers d'un système de réseaux. Les durées d'impulsion passent alors sous la barre de la picoseconde avec des énergies atteignant plusieurs centaines de mJ. L'intérêt est alors de pouvoir étudier de phénomènes physiques se déroulant sur des temps courts comme les transitions de phase.

A l'heure actuelle, les lasers se déclinent en plusieurs catégories suivant leurs durées d'impulsions, leurs cadences, leurs énergies et leurs intensités et sont utilisés dans une multitude de domaines. Selon les types de laser et l'étude souhaitée, plusieurs méthodes sont utilisées pour étudier le WDM avec des lasers.

## **Le chauffage par choc**

Afin d'étudier les équations d'état de la matière comprimée, les lasers pulsés de haute puissance à impulsion nanoseconde sont utilisés afin de générer des chocs [14,15]. La création d'une onde de choc (montée en pression) n'est pas liée à la pression de radiation mais basée sur le processus d'ablation. Dans le cas de l'interaction d'un laser intense ( $I > 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$ ) avec une cible solide, la matière s'ionise et un plasma chaud est créé à la surface de la cible. La pression et la température augmentent dans la zone d'interaction et une force se propage vers l'intérieur de la cible. La matière se détend vers le vide et par conservation de la quantité de mouvement, en réaction, la détente entretient cette force dirigée vers l'intérieur de la cible. L'onde de choc est générée, elle se propage dans la cible en la comprimant.

Le passage du choc dépose de l'entropie et entraîne une montée de la température. Les temps caractéristiques de ce type d'expérience sont de la centaine de picosecondes à plusieurs nanosecondes. En conséquence, il n'y a pas de déséquilibre entre les températures électroniques et ioniques. Cette matière fortement comprimée est à l'équilibre thermodynamique et des températures de plusieurs eV sont atteintes pour des densités supérieures à celle du solide. De plus, les chocs permettent de porter la matière dans un état WDM sur une profondeur de plusieurs micromètres, ce qui peut s'avérer nécessaire pour certaines techniques de sonde en transmission.

## Le chauffage par proton

En régime relativiste, un faisceau de protons peut être généré par l'interaction d'un laser ultra intense ( $I_0 > 10^{18} \text{ W.cm}^{-2}$ ) sur une cible fine [16, 17]. L'ionisation en face avant crée rapidement une forte population électronique. Ces électrons sont alors accélérés à des énergies relativistes vers l'intérieur de la cible par différents mécanismes d'absorption laser. Après avoir traversé la cible, ces électrons sortent en face arrière à une distance proche de la longueur de Debye. La séparation de charge crée un champ électrostatique qui, en retour, accélère les protons de la cible perpendiculairement à cette dernière. Les protons accélérés proviennent majoritairement des particules polluant la surface comme des hydrocarbures, de l'eau. Les protons sont accélérés à des énergies de quelques dizaines de MeV sur une distance de quelques dizaines de micromètres [18]. Sachant que la pénétration des protons est plus importante que celle d'un laser optique, ces protons accélérés sont utilisés pour chauffer de manière isochore une cible annexe sur plusieurs micromètres de profondeur [19, 20]. Bien que le processus de génération de protons soit court, la dispersion du temps de vol entre la cible de génération et la cible chauffée fait que le temps de chauffage est beaucoup plus long ( $> 10 \text{ ps}$ ). La cible est alors chauffée à l'équilibre de température électronique et ionique.

## Le chauffage par rayon X

Les photons de hautes énergies, en dehors des flancs d'absorption, interagissent très peu avec la matière. Le dépôt d'énergie dans un échantillon traversé par un tel rayonnement est donc quasiment constant dans l'espace, le chauffage est homogène. En effet, la profondeur de pénétration pour des photons d'énergie comprise entre 1 et 10 keV sera comprise entre  $1 \mu\text{m}$  et 1 mm dans le cas de l'aluminium alors qu'il sera de l'ordre de 20 nm pour un laser optique. On dira que le chauffage s'effectue en volume. De plus, si la durée d'impulsion du faisceau de rayon X est inférieure à la picoseconde, temps caractéristique de l'expansion hydrodynamique, le chauffage peut être considéré comme isochore. Avec l'avènement des lasers à électrons libres, il devient maintenant possible d'avoir des impulsions suffisamment énergétiques pour effectivement chauffer la matière. L'accès à de telles installations est néanmoins rare et difficile, c'est pourquoi il est intéressant de recourir à une autre méthode beaucoup moins coûteuse, le chauffage par laser optique.

## Le chauffage par laser optique

Ce chauffage correspond aux expériences réalisées dans cette thèse. Avec l'avènement des lasers intenses ultra-courts, les temps des impulsions lasers deviennent plus courts que les temps d'équilibration thermodynamiques. La matière est portée dans un état hors équilibre qu'il est possible de sonder avec une résolution temporelle sub-picoseconde. Naturellement, un système chauffé va chercher à se détendre vers le vide. Alors que les temps caractéris-

tiques d'expansion sont de l'ordre de la picoseconde, les résolutions temporelles dont nous disposons ( $< 100$  fs) doivent nous permettre de résoudre temporellement la mise en mouvement du système mais également de sonder les différents mécanismes électroniques qui ont lieu avant et pendant l'expansion hydrodynamique. Il est maintenant communément admis que les électrons sont les premières particules à recevoir l'énergie du laser. On dénote deux principaux mécanismes :

- Les électrons en bande de conduction reçoivent l'énergie principalement lors des collisions avec d'autres particules, pendant l'oscillation dans le champ laser. Un électron libre ne peut pas absorber de photon seul, la présence d'un troisième corps est nécessaire pour conserver après l'absorption à la fois le moment et l'énergie. Ce troisième corps peut être entre autres un phonon, un électron ou un ion. Ensuite, les électrons se thermalisent entre eux par collisions électron-électron. Après une dizaine de collisions, le processus de thermalisation du gaz d'électron est achevé et une température peut être attribuée au système d'électrons.
- Si l'énergie du photon ou l'intensité du laser est suffisante, les électrons en bande de valence peuvent effectuer une transition interbande et se retrouver en bande de conduction. On peut parler d'ionisation à un photon ou multi-photonique. Ce processus est habituel dans les diélectriques pour lesquels il n'y a pas d'électrons de conduction initialement. Il existe également dans les métaux nobles comme nous le verrons au §1.2.5.

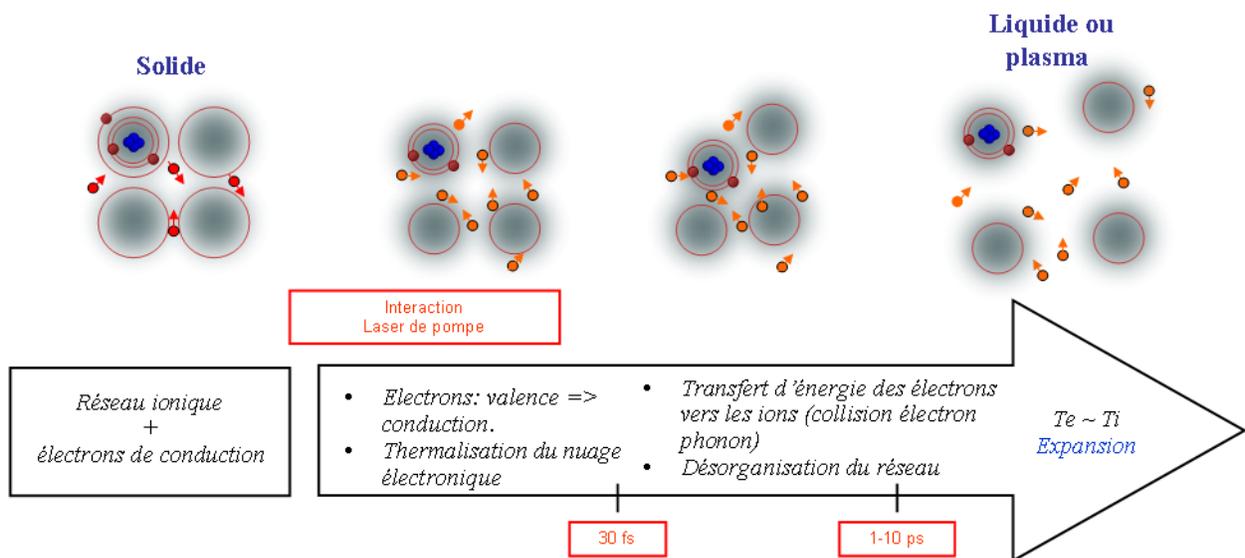


FIGURE 2 – Schéma d'une transition de phase ultra-rapide induite par laser.

Le processus de thermalisation de la population électronique est généralement considéré comme très court ( $< 100$  fs), les ions restent immobiles et le réseau conserve sa structure. On se trouve donc dans une situation hors équilibre, les températures électronique et ionique ne sont pas égales ( $T_e > T_i$ ). Ensuite, la température ionique augmente grâce au couplage électron-phonon qui est responsable du transfert d'énergie des électrons vers les ions du réseau. Les collisions entre les électrons et les ions apparaissent rapidement mais, à cause du rapport des masses, le réseau met entre 1 et 10 ps à atteindre sa température de fusion comme présenté sur la figure 2.

Le chauffage par laser optique se caractérise également par le fait que la zone chauffée est petite, de l'ordre de la dizaine de nanomètre donc ce type de chauffage nécessite peu d'énergie. En revanche, cette technique requiert de sonder en surface ou au travers d'un échantillon très fin et, plus l'épaisseur sondée est faible, plus la mesure est sensible à l'hydrodynamique.

## But et plan de la thèse

Cette thèse a pour but de caractériser expérimentalement des métaux portés dans des conditions WDM hors-équilibre par le biais de leur propriétés optiques. Pour ce faire, un interféromètre dans le domaine des fréquence (FDI [21]) est mis en place. Il permet la mesure du déphasage et de la réflectivité dans les 2 directions de polarisation d'une onde en réflexion sur une cible. Ensuite, depuis les propriétés optiques, des propriétés de la matière irradiée en sont déduites.

Avec une méthode expérimentale analogue, certaines études expérimentales ont été réalisées sur de fines cibles d'or en négligeant les effets hydrodynamiques présents à l'interface solide-vide [22–24]. Elles ont amené à l'observation d'une réponse temporelle stationnaire du matériau de quelques picosecondes et d'un renforcement des transitions interbandes. D'autres études réalisées à plus hautes fluences en réflexion sur cible épaisses [25, 26] ont montrés que la longueur de gradient pouvait être déduite d'une mesure interférométrique pour des longueurs de gradient de l'ordre de  $\lambda/10$ . Ensuite, l'utilisation d'un modèle hydrodynamique permet d'en déduite une température.

Dans cette thèse, nous nous intéressons aux réponses hydrodynamique et diélectrique des métaux irradiés à faible fluence ( $\simeq 1$  J/cm<sup>2</sup>). Pour ce faire, dans un premier chapitre nous présenterons une description des électrons en régime dégénéré pour aboutir à une correspondance entre la population électronique en bande de conduction et la température. Ensuite, nous évoquerons des modèles théoriques simples qui décrivent la fonction diélectrique, réponse optique du matériau. Cette description pendra en compte les transitions intrabandes

et interbandes.

Le deuxième chapitre est consacré à la réalisation expérimentale du diagnostic FDI. Souhaitant étudier les matériaux irradiés à faible fluence, l'accent est ici porté sur son optimisation. Il nous permettra des mesures très fines de déphasage et de réflectivité d'une onde en réflexion sur une cible.

Le troisième chapitre est consacré à la définition d'un critère qui valide la mesure d'indice optique. Quand il s'applique, il nous permettra de séparer les contributions hydrodynamique et diélectrique à la phase et à la réflectivité mais également de connaître le régime d'expansion dans lequel la cible irradiée se trouve. On proposera ainsi une méthode pour estimer les longueurs de gradient de l'ordre de  $\lambda/1000$ .

Enfin, nous présenterons dans un quatrième chapitre les résultats expérimentaux. L'étude de l'expansion hydrodynamique sera réalisée sur une cible en aluminium et comparée au code de simulation Esther puis la mesure de fonction diélectrique sera traitée sur des cibles en or. En seront déduites la densité électronique en bande de conduction et la fréquence de collision en régime WDM hors équilibre. Nous discuterons de l'évolution des transitions interbandes et verrons que la connaissance de la fonction diélectrique d'un métal noble permet la mesure de température électronique.

## Interaction laser matière

Dans cette thèse, nous cherchons à caractériser par méthode optique les métaux portés dans un état de WDM. Dans ce chapitre, on décrira succinctement les paramètres importants qui permettent de classifier la matière puis, on s'intéressera plus particulièrement aux métaux et à leur interaction avec des ondes électromagnétiques. On présentera ensuite des modèles simples que l'on utilisera pour interpréter nos expériences.

### 1.1 Modèle de la matière

À la frontière entre deux domaines de la physique, comme précisé dans l'introduction, la détermination des modèles physiques à utiliser pour décrire la WDM passera dans un premier temps par une classification de la matière. Elle s'obtient en comparant différents ordres de grandeur. La densité caractéristique de particule par unité de volume,  $n$ , permet de calculer la distance moyenne entre particules  $d$  selon

$$d = n^{-1/3}. \quad (1.1)$$

À température ambiante, cette distance est de l'ordre de  $2\text{\AA}$  pour les solides (cas du fer),  $3\text{\AA}$  pour les liquides (cas de l'eau) et supérieur à  $30\text{\AA}$  pour les gaz (cas de l'air). Dans le régime WDM, les densités vont de 0.1 à 10 fois la densité du solide, la distance moyenne entre particules s'étalera de 0.5 à 2 fois la distance moyenne dans le cas du solide et la température va de quelques dixièmes d'électron-volt à une dizaine. Dans la suite, nous allons rappeler les paramètres permettant de classifier la matière en termes de dégénérescence et de couplage dans ce domaine de température et de densité.

#### 1.1.1 Plasma fortement couplé et matière dégénérée

Comme présenté sur la figure 1.1, les plasmas peuvent se classer selon 2 grandes catégories, les plasmas classiques et les plasmas dégénérés ou quantiques. Pour chacun de ces

domaines, une classification plus en profondeur différencie les plasmas fortement couplés des plasmas faiblement couplés. Ces notions sont quantifiées par l'introduction des paramètres sans dimension suivant :

- Le paramètre de dégénérescence  $\Lambda$  distingue les plasmas classiques des plasmas dégénérés.
- Le paramètre de corrélation, noté  $\Gamma$  dans le domaine classique et  $\Gamma_Q$  dans le domaine dégénéré, différencie les plasmas fortement et faiblement couplés.

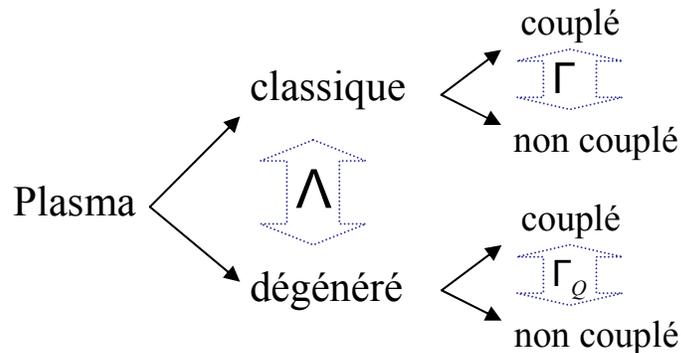


FIGURE 1.1 – Classification des plasmas.

### 1.1.1.1 Paramètre de dégénérescence

Ce paramètre est lié à la nature quantique des électrons. Un électron libre de vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  possède une énergie

$$\varepsilon = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}. \quad (1.2)$$

En considérant les électrons comme des ondes, une longueur d'onde  $\lambda = 2\pi/k$  appelée longueur de deBroglie leur est associée. L'électron libre n'est soumis à aucun potentiel, son énergie est cinétique. Pour une population à température  $T_e$ , vient alors la définition de la longueur d'onde de de Broglie thermique

$$\lambda_{dB} = \sqrt{\frac{h^2}{2m_e k_B T_e}}, \quad (1.3)$$

ou encore numériquement,

$$\lambda_{dB}[\text{\AA}] = \frac{12.3}{\sqrt{T_e[\text{eV}]}}, \quad (1.4)$$

Si la distance qui sépare les électrons est plus petite que  $\lambda_{dB}$ , leurs fonctions d'ondes se recouvrent et les électrons entrent dans un régime dégénéré. À volume constant, plus la

température est élevée, plus la longueur d'onde est petite donc moins les électrons sont dégénérés. Souhaitant comparer cette distance à la distance inter-électronique, nous définissons le paramètre de dégénérescence comme étant

$$\Lambda \equiv \lambda_{dB} n_e^{1/3}, \quad (1.5)$$

avec  $n_e$  la densité électronique.

Pour  $\Lambda \ll 1$ , le plasma est classique et les électrons sont décrits par la distribution de Maxwell-Boltzmann. Ils interagissent entre eux principalement par le biais de l'interaction coulombienne. En revanche, pour  $\Lambda \gtrsim 1$ , les électrons sont dégénérés. Le principe d'exclusion de Pauli s'applique et les électrons sont décrits par la statistique de Fermi-Dirac.

Une manière plus directe pour présenter le paramètre de dégénérescence est de comparer la température électronique à la température de Fermi. En effet, comme la température de Fermi n'est fonction que de la densité  $T_F \sim n_e^{2/3}$ , le paramètre de dégénérescence se réécrit  $\Lambda^2 \equiv T_F/T_e$ . Les électrons seront classiques si  $T_e \gg T_F$  et réciproquement. Par conséquent, avec  $\Lambda \simeq 1$ , la WDM se trouve dans un régime faiblement dégénéré.

### 1.1.1.2 Paramètre de corrélation

#### Plasma classique

Dans le cas des plasmas classiques à l'équilibre thermodynamique, la longueur de Landau est définie comme la distance minimale d'approche de deux électrons animés d'une vitesse  $v_e$ . En égalisant les énergies cinétiques et potentielles, nous arrivons ainsi à la longueur de Landau qui a pour expression

$$r_0 = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 k_B T_e}, \quad (1.6)$$

ou encore numériquement,

$$r_0[\text{Å}] = \frac{14.4}{T_e[\text{eV}]}. \quad (1.7)$$

Les notions de distance inter-électronique et longueur de Landau vont permettre de classifier les plasmas par l'introduction du paramètre de corrélation (ou paramètre plasma)

$$\Gamma \equiv \frac{\epsilon_p}{\epsilon_c} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{n_e^{1/3}}{k_B T_e} = \frac{r_0}{d_e}, \quad (1.8)$$

avec  $d_e$  la distance inter-électronique. Le critère devient donc :

- $\Gamma \ll 1$  correspond aux plasmas cinétiques classiques dis faiblement corrélés. L'énergie cinétique prédomine comme dans un gaz parfait.

- En revanche, lorsque  $\Gamma \gtrsim 1$ , le plasma est fortement corrélé. L'énergie potentielle prédomine, la matière s'organise de manière à minimiser l'énergie libre. Un ordre à courte ou longue distance peut exister, et ne peut être négligé.

### Plasma dégénéré

Dans le cadre des plasmas dégénérés, la formulation de l'énergie cinétique utilisée dans l'équation (1.6) ne s'applique plus. Selon la théorie de Sommerfeld [27], l'énergie moyenne par électron dans un gaz d'électron à température nulle est une fonction de la densité. En moyenne, elle s'écrit

$$\varepsilon_Q = \frac{3}{5}\varepsilon_F, \quad (1.9)$$

avec  $\varepsilon_F = (\hbar^2/2m_e)(3\pi^2n_e)^{2/3}$  l'énergie de Fermi. De manière analogue à l'équation (1.8), le paramètre de corrélation s'écrit

$$\Gamma_Q \equiv \frac{\varepsilon_p}{\varepsilon_Q} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 d_e} \frac{5}{3\varepsilon_F} \sim n_e^{-1/3}. \quad (1.10)$$

Les plasmas dégénérés faiblement couplés ont donc un paramètre de corrélation  $\Gamma_Q \ll 1$  alors que nous trouvons le régime dégénéré fortement couplé pour  $\Gamma_Q \gtrsim 1$ . Contrairement au cas des plasmas classiques, le paramètre de corrélation des plasmas dégénérés calculé ici à température nulle est inversement proportionnel à la densité à la puissance 1/3. En effet, plus la densité est élevée, plus l'énergie de Fermi grandit et le poids de l'énergie potentielle devient moindre.

Comme illustré sur la figure 1.2, les plasmas faisant l'objet de cette thèse sont à la frontière entre les différents domaines. Les électrons en bande de conduction d'un métal à froid forment un gaz dégénéré à une densité typique de  $10^{23} \text{ cm}^{-3}$ . Chauffés de manière isochore à une température entre 1 et 10 eV, les électrons seront à la limite de dégénérescence. La physique des plasmas classique est donc inadaptée, il faut s'inspirer de la physique du solide en tenant compte des effets de température pour  $T_e \simeq T_F$ .

#### 1.1.1.3 Écrantage

##### Cas non dégénéré : Longueur de Debye

L'effet Debye-Hückel est lié au phénomène d'écrantage de la charge existant dans les milieux ionisés. Cet effet se comprend qualitativement de la manière suivante : considérons une mer d'électrons infinie à l'équilibre thermodynamique dans laquelle la densité électronique  $n_e$  est uniforme en espace. Plaçons dans cette mer d'électrons un ion qui va perturber le système. Les électrons vont être attirés par l'ion via la force de coulomb donc la répartition

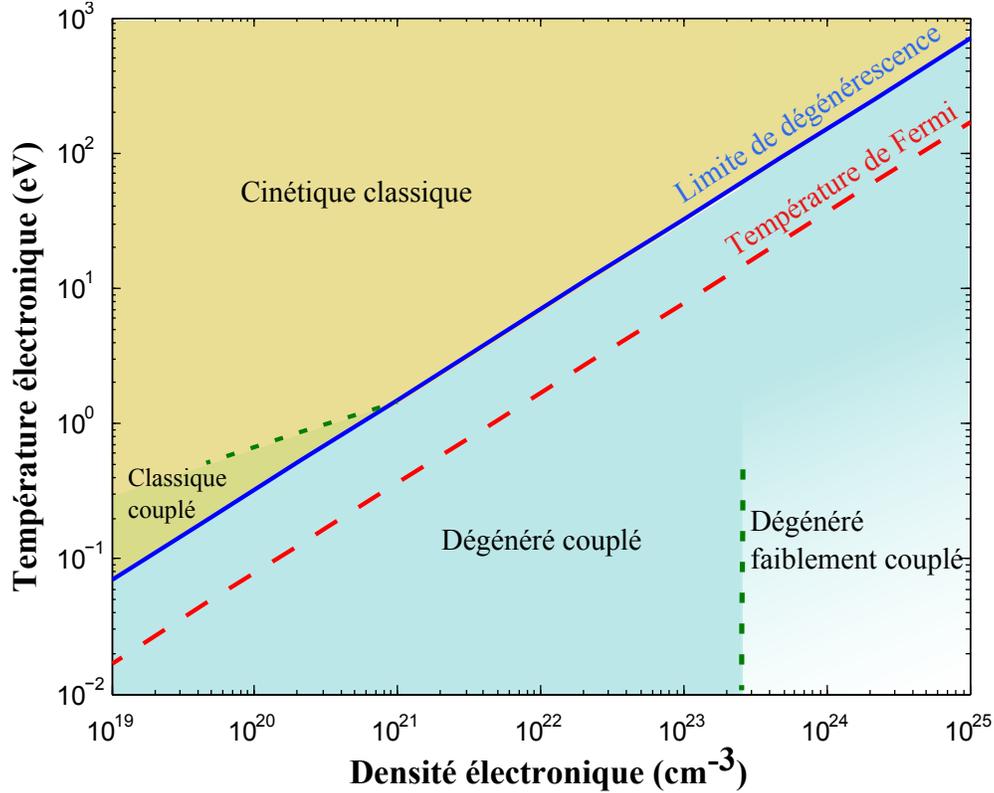


FIGURE 1.2 – Diagramme de classification des plasmas.

de la densité électronique sera modifiée. En effet, les électrons à proximité vont se rapprocher de l'ion de manière à annuler la charge ionique qui est écrantée par les électrons.

La distance caractéristique sur laquelle se manifeste l'écrantage se décrit par la longueur de Debye. Soit un plasma uniforme en température dans lequel nous cherchons à connaître la distribution de la densité électronique puis la répartition du potentiel. Pour rendre compte du phénomène d'écrantage, la densité électronique n'est pas constante. Au voisinage d'un ion, un élément de volume sera affecté par deux forces :

$$\begin{aligned} \text{La force de Coulomb} \quad \vec{F}_E &= -n_e e \vec{E} \\ \text{La force de pression} \quad \vec{F}_{P_e} &= -k_B T_e \vec{\nabla} n_e \end{aligned}$$

avec  $E$  le champ électrostatique. À l'équilibre, ces deux forces s'opposent. En introduisant le potentiel électrostatique  $\Phi$  défini par  $\vec{E} = -\vec{\nabla}\Phi$ , vient alors l'équation différentielle suivante

$$\frac{1}{n_e} \frac{dn_e}{dr} = \frac{e}{k_B T_e} \frac{d\Phi}{dr}, \quad (1.11)$$

écrite en coordonnée sphérique de manière à utiliser la symétrie du problème. Après intégra-

tion, la densité électronique en fonction du potentiel s'écrit :

$$n_e(r) = n_{e0} \exp\left(\frac{e\Phi(r)}{k_B T_e}\right) \quad (1.12)$$

avec  $n_{e0}$  la densité du plasma électroniquement neutre et homogène. Notons que la densité électronique suit la statistique de Boltzmann. Dans le cas des plasmas cinétiques classiques faiblement couplés, l'énergie cinétique est grande comparée à l'énergie potentielle ( $e\Phi(r) \ll k_B T_e$ ) et la densité électronique peut être linéarisée :

$$n_e(r) = n_{e0} \left(1 + \frac{e\Phi(r)}{k_B T_e}\right). \quad (1.13)$$

L'équation de Poisson permet également de relier le potentiel à la densité électronique. En remplaçant la densité électronique écrite dans équation (1.13), l'équation de Poisson se réécrit selon [28]

$$\Delta\Phi(r) = \frac{\Phi(r)}{\lambda_D^2} - \frac{Ze}{\epsilon_0}\delta(r), \quad (1.14)$$

où  $Ze$  représente la charge ionique et  $\lambda_D$  la longueur de Debye électronique. Elle a pour expression :

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T_e}{n_e e^2}}, \quad (1.15)$$

ou encore numériquement,

$$\lambda_D[\text{pm}] = 23.5 \sqrt{\frac{T_e[\text{eV}]}{n_e[10^{23} \text{ cm}^{-3}]}}. \quad (1.16)$$

Plus la longueur de Debye est petite, plus l'écrantage est efficace. Pour que l'écrantage soit efficace, les électrons doivent avoir la possibilité de se regrouper à proximité des ions. Lorsque la température électronique est élevée, la trajectoire des électrons est très peu modifiée par la présence des ions et le nuage électronique tend à s'homogénéiser. L'écrantage est moins efficace, c'est la raison pour laquelle la longueur de Debye grandit avec la température. De plus, une densité de particule importante renforcera l'effet d'écran.

L'intégration de l'équation (1.14) conduit à l'expression du potentiel de Debye issu d'un ion d'une charge  $Ze$

$$\Phi(r) = \frac{Ze}{4\pi\epsilon_0 r} \exp\left(\frac{-r}{\lambda_D}\right), \quad (1.17)$$

avec  $Z$  le degré d'ionisation. Le potentiel de Coulomb est donc remplacé dans un plasma par le potentiel de Debye. L'écrantage se manifeste par le biais de l'exponentielle décroissante qui a pour effet de réduire la portée du potentiel de la charge.<sup>1</sup>

---

1. Pour établir l'équation (1.8), nous avons raisonné sur un système de 2 particules. Dans un système formé d'un grand nombre de particules, la portée du potentiel coulombien n'est pas à portée infinie mais est effectif sur une longueur de Debye. Pour écrire le potentiel de corrélation, il devient logique de comparer la longueur moyenne entre particules à  $\lambda_D$ . L'équation (1.8) devient  $\Gamma \equiv 1/4\pi(d_e/\lambda_D)^2$ .

### Cas dégénéré

Nous considérons ici l'effet d'écran dans un gaz d'électrons dégénérés. Une particule chargée positivement est placée en une position donnée dans le gaz d'électrons, la position de l'ion est fixée à cet endroit. Les électrons aux alentours sont attirés par l'ion, créant un surplus de charge qui réduit (écran) le champ de l'ion. Une solution simple (semi-classique) pour décrire l'écrantage consiste à utiliser la théorie de l'effet d'écran de Thomas-Fermi [27]. Les électrons sont décrits de façon semi-classique ( $\varepsilon = \hbar^2 k^2 / 2m_e - e\Phi$ ) et répondent à la statistique de Fermi-Dirac. Le potentiel de l'ion écranté est alors de forme coulombienne multipliée par une atténuation exponentielle qui le réduit à une quantité négligeable sur des distances plus grandes que celle de l'ordre de  $1/k_0$  où  $k_0$  est le vecteur d'onde de Thomas-Fermi. Le potentiel d'une charge  $Ze$  écrantée s'écrit :

$$\Phi(r) = \frac{Ze}{4\pi\epsilon_0 r} \exp(-k_0 r). \quad (1.18)$$

Lorsque  $T_e \ll T_F$ , le vecteur de Thomas-Fermi s'écrit :

$$k_0 = k_F \left( \frac{16}{3\pi^2} \right)^{1/3} \left( \frac{r_s}{a_0} \right)^{1/2} \quad (1.19)$$

ou  $k_F = (3\pi^2 n_e)^{1/3}$  est le vecteur d'onde de Fermi,  $a_0 = \hbar^2 4\pi\epsilon_0 / m_e e^2$  le rayon de Bohr et  $r_s = (3/4\pi n_e)^{1/3}$  le rayon d'une sphère dont le volume est égal au volume par électron de conduction. Numériquement, on obtient :

$$k_0 = 1.98 \sqrt{n_e^{1/3} / a_0} \quad (1.20)$$

avec  $a_0 = 0.529 \text{ \AA}$ . Pour l'or, le potentiel électrostatique d'un ion est réduit d'un facteur  $1/e$  au bout de  $0.6 \text{ \AA}$ , ce qui est de l'ordre de la distance entre particules. Les électrons sont donc hautement efficaces pour masquer le potentiel des ions et la bande de conduction peut s'apparenter à celle d'un gaz d'électrons libres.

Sans faire l'approximation semi-classique, dans l'approche de Lindhard, le potentiel écranté  $\Phi$  d'une charge ponctuelle a maintenant un terme qui se comporte, à température nulle, comme :

$$\Phi(r) \sim \frac{1}{r^3} \cos 2 k_F r. \quad (1.21)$$

#### 1.1.2 Les métaux

Un métal peut être simplement modélisé, comme dans le cadre du modèle de Drude, par le modèle des électrons libres. En effet, dans un métal, le niveau de Fermi se trouve dans la bande de conduction donc les électrons de plus haute énergie sont libres de se déplacer. Les

électrons de valence deviennent alors des électrons de conduction et, comme présentée sur le schéma 1.2, pour des températures de l'ordre ou inférieur à celle de Fermi, la nature quantique des électrons doit être prise en considération (électrons dégénérés). La fonction de distribution de Maxwell du gaz classique doit être remplacée par la distribution de Fermi-Dirac.

### 1.1.2.1 Description des électrons

**Distribution de Fermi-Dirac** De spin demi-entier, les électrons répondent au principe d'exclusion de Pauli qui interdit à deux électrons se trouvant au même endroit de se trouver dans le même état quantique. Ainsi, 2 électrons de même spin ne peuvent occuper le même niveau d'énergie. Dans l'état fondamental à température nulle,  $N$  fermions occupent avec une probabilité 1 les  $N$  niveaux de plus basse énergie. On appelle énergie de Fermi  $\varepsilon_F = k_B T_F$  l'énergie associée à l'électron de plus haute énergie. Pour un gaz dégénéré d'électrons libres, elle s'écrit :

$$\varepsilon_F = \frac{\hbar^2}{2m_e} (3\pi^2 n_e)^{2/3}. \quad (1.22)$$

À température nulle, tous les niveaux d'énergies inférieurs à  $\varepsilon_F$  sont donc remplis alors que les niveaux d'énergies supérieurs sont vacants. La fonction de distribution se résume en une fonction de type Heaviside. Pour des températures non nulles, la probabilité de présence d'un électron en fonction de son énergie s'exprime par la fonction de distribution de Fermi-Dirac :

$$f(\varepsilon) = \frac{1}{1 + e^{(\varepsilon - \mu)/k_B T_e}}, \quad (1.23)$$

où  $\mu$  représente le potentiel chimique. Il s'exprime comme la variation d'énergie interne du système en fonction du nombre de particules, à volume et entropie constante. À température nulle, en ajoutant une particule à un système formé de  $N$  électrons, l'énergie de la particule ajoutée sera égale à l'énergie de Fermi du système des  $N + 1$  particules en vertu du principe d'exclusion de Pauli. Ainsi, le potentiel chimique est égal à l'énergie de Fermi à température nulle.

**Densité d'états du gaz d'électrons libres** Nous définissons également la notion de densité d'états électroniques  $g(\varepsilon)$  (DOS pour Density Of State). Elle quantifie le nombre d'états électroniques par unité de volume et dans un intervalle d'énergie donnée. Le cas le plus simple est celui du gaz d'électrons libres pour lequel la DOS s'écrit simplement [27] :

$$g(\varepsilon) = \frac{1}{2\pi^2} \left( \frac{2m_e}{\hbar^2} \right)^{3/2} \sqrt{\varepsilon} \quad (1.24)$$

Les DOS des métaux peuvent s'obtenir par des calculs de structure électronique [29]. Comme

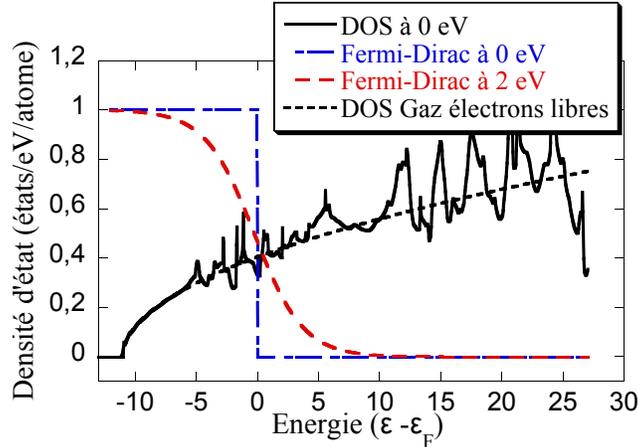


FIGURE 1.3 – Densité d'états de l'aluminium extraite de [29] et distribution de Fermi-Dirac.

présentée sur la figure 1.3, pour un métal simple comme l'aluminium, la DOS des électrons de conduction peut être décrite en première approximation par celle d'un gaz d'électrons libres. En effet, les électrons de conduction écrantent le potentiel ionique et la densité d'état de l'aluminium présente un comportement en racine carrée de l'énergie.

**Densité d'états des métaux nobles** Les électrons externes des métaux nobles comme le cuivre, l'argent et l'or ont respectivement des configurations  $3d^{10}4s^1$ ,  $4d^{10}5s^1$ ,  $5d^{10}6s^1$ . Contrairement à l'aluminium, les densités d'états de ces métaux ont des caractéristiques de structure électronique en plusieurs bandes distinctes. La bande externe  $s$  est raisonnablement bien décrite par le modèle des électrons libres avec une densité d'état en  $\varepsilon^{1/2}$ . Cette large bande couvre un domaine d'énergie étendu et contient le niveau de Fermi. La bande  $d$ , quant à elle, correspond à une région de forte densité d'états qui couvre un domaine étroit en énergie et se trouve 2 à 5 eV sous le niveau de Fermi comme présenté sur la figure 1.4. À température nulle, parmi les 11 électrons de valence des métaux nobles, 10 remplissent la bande  $d$  et l'unique électron restant remplit partiellement la bande  $s$ . Sur le diagramme de bande de la figure 1.5, l'ensemble des 5 bandes étroites sont conventionnellement appelées bandes  $d$ , et les bandes restantes bandes  $s$ . Remarquons que la dépendance en  $\mathbf{k}$  des niveaux des bandes  $s$ , sauf quand ils approchent les bandes  $d$ , ont une forte ressemblance avec les bandes d'électrons libres pour un cristal cfc. On associera alors les électrons en bande  $s$  aux électrons de conduction.

### 1.1.2.2 Évolution du nombre d'électrons en bande de conduction avec $T_e$

Par définition de  $f$  et  $g$ , la densité électronique est donnée par

$$n_e = \int_0^\infty f(\varepsilon, \mu(T_e), T_e) g(\varepsilon) d\varepsilon. \quad (1.25)$$

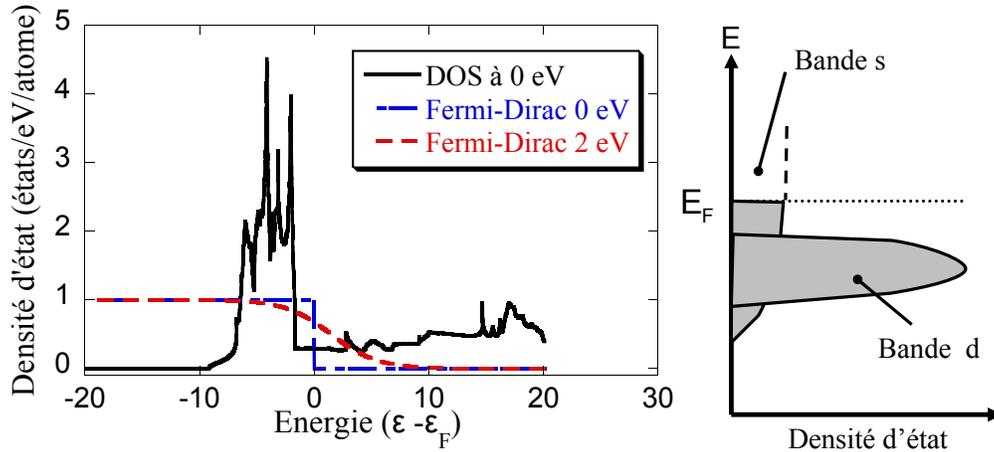
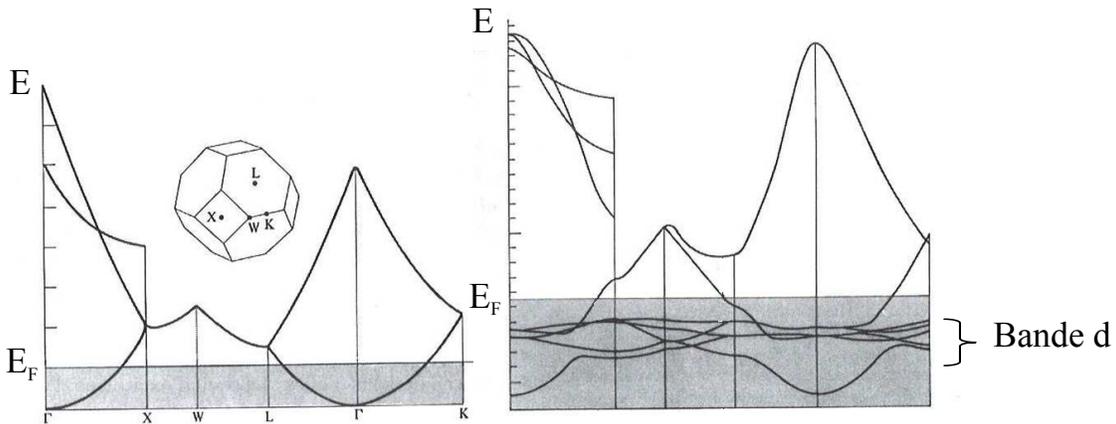


FIGURE 1.4 – Densité d'état de l'or.


 FIGURE 1.5 – (Gauche) Bandes d'électrons libre calculées pour un cristal cfc. (Droite) Bandes du cuivre calculées par Burdick [30]. Noter la ressemblance des bandes autres que les bandes  $d$  avec les bandes d'électrons libres. Les figures sont issues de la référence [27].

Dans un métal noble, si la température augmente faiblement ( $k_B T_e \ll \varepsilon_F - \varepsilon_c$ ) où  $\varepsilon_c$  correspond à l'énergie à la limite entre les électrons de bande  $d$  et les électrons de conduction, le comportement du gaz électronique correspond à celui prédit par le gaz d'électron libre. Le nombre d'électrons en bande de conduction n'évolue pas, il correspond à l'unique électron  $s^1$ . En revanche, pour des températures plus élevées  $T_e \gtrsim 1$  eV, un nombre non négligeable d'électrons provenant de la bande  $d$  est excité. Nous dirons de manière intuitive que ces électrons passent en bande de conduction.

Nous cherchons ici à relier la densité électronique en bande de conduction à la température électronique. Pour avoir un problème à une seule dimension, nous caractérisons uniquement par son énergie le fait qu'un électron soit en bande de conduction ou en bande  $d$ . Comme présenté précédemment, la DOS est la superposition de 2 zones. Une évoluant en  $\varepsilon^{1/2}$  re-

présentant la bande  $s$  et une autre de forte densité associée aux électrons de la bande  $d$ . La bande  $s$  apparaît donc de part et d'autre de la bande  $d$ . À température nulle, en intégrant l'équation (1.25) sur les deux zones associées à la bande  $s$  (avant et après la bande  $d$ ), on obtient une densité correspondant à 1 électron par atome soit l'unique électron en bande de conduction.

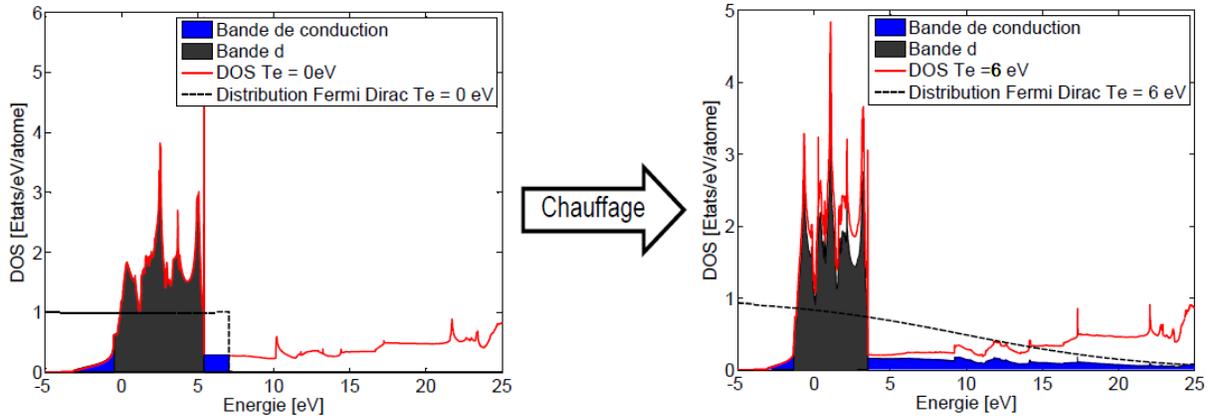


FIGURE 1.6 – Représentation de la densité d'état de l'or et de la fonction de distribution de Fermi Dirac pour 2 températures électroniques. Pour  $T_e = 6$  eV, des électrons sont excités de la bande  $d$  vers la bande de conduction. Présentation de la méthode de calcul de la densité électronique en bande de conduction avec la température.

On utilise alors la même procédure, mais à température non nulle, pour calculer l'évolution du nombre d'électrons en bande de conduction avec la température électronique (voir figure 1.6). Lorsque la température augmente, la fonction de distribution électronique se déforme et un nombre non négligeable d'électrons sont excités de la bande  $d$  vers la bande de conduction. L'évolution de la densité électronique en bande de conduction en fonction de la température s'obtient en calculant numériquement l'intégrale (1.25). Notons que la DOS peut évoluer avec la température électronique. Selon un calcul de dynamique moléculaire réalisé avec le code ABINIT [31], lorsque la température augmente, la bande  $d$  est décalée vers les faibles énergies alors que sa largeur s'amointrit. De plus, le potentiel chimique se décale vers les hautes énergies. Pour ces raisons, une DOS différente est associée à chaque température<sup>2</sup>. Le résultat est présenté sur le graphique 1.7. Comme attendu, à partir d'environ 0.3 eV, le nombre d'électrons en bande de conduction augmente avec la température. Il existe donc une relation univoque entre le nombre d'électrons en bande de conduction et la température électronique. Notons que dans le cas l'aluminium, le nombre d'électrons en bande de conduction dans la gamme de température considérée reste égal à 3.

2. Les DOS nous ont été fournies par l'équipe de V.Recoules. Elles sont calculées pour chaque température électronique avec une température ionique nulle.

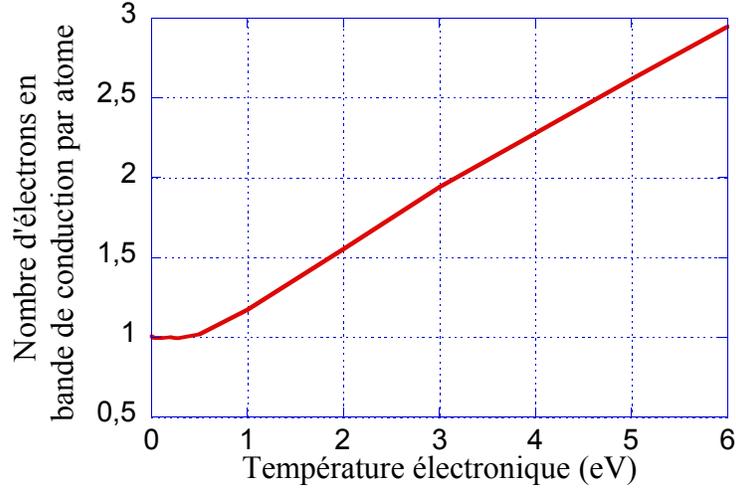


FIGURE 1.7 – Évolution du nombre d'électrons en bande de conduction par atome pour l'or en fonction de la température électronique.

## 1.2 Réponse d'un métal à une onde électromagnétique : La fonction diélectrique

Dans le cadre d'une expérience pompe sonde, les ondes électromagnétiques sont utilisées comme source d'énergie et également comme outil de mesure. Afin de décrire les mécanismes d'absorption laser ainsi que les moyens à notre disposition pour sonder la matière, nous allons décrire la notion de fonction diélectrique.

### 1.2.1 Propagation d'une onde électromagnétique dans un milieu homogène

La convention choisie pour décrire les ondes lasers utilisées dans la suite de ce manuscrit va déterminer le signe de nombreuses quantités et notamment le signe des déphasages. S'agissant d'un choix purement conventionnel, nous écrivons le champ électrique dans le vide selon

$$E = \text{Re}[E_0 e^{i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})}], \quad (1.26)$$

avec  $k = \omega/c$  le nombre d'onde dans le vide et  $\omega$  la pulsation. Dans un milieu, l'équation de Maxwell-Ampère

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{B} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \mu_0 \vec{j} \quad (1.27)$$

avec  $\mu_0$  la perméabilité du vide fait intervenir le vecteur densité de courant  $\vec{j}$ . La relation entre  $\vec{j}$  et  $\vec{E}$  contient toute l'information sur les propriétés diélectriques du milieu. Nous considérons qu'il existe une relation de proportionnalité entre le vecteur densité courant et

le champ électrique. La loi d'Ohm s'écrit dans l'espace de Fourier  $j = \sigma E$  avec  $\sigma(\omega)$  la conductivité électrique. Après dérivation, cette équation se réécrit suivant

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{B} = \frac{i\omega}{c^2} \epsilon E \quad (1.28)$$

avec  $\epsilon$  la fonction diélectrique. Elle décrit la réponse d'un milieu à une excitation électromagnétique. Fonction complexe, ses composantes réelles et imaginaires sont reliées entre elles par les relations de Kramers-Kronig. Une composante peut être déduite de l'autre à condition de connaître celle-ci sur tout le spectre. Par identification, cette fonction s'écrit :

$$\epsilon = 1 - i \frac{\sigma}{\omega \epsilon_0}. \quad (1.29)$$

Le signe devant la partie imaginaire dépend de la convention sur le sens de propagation utilisée. Pour les pulsations rapides, la fonction diélectrique tend vers 1. Le plasma n'a pas le temps de répondre et se comporte comme le vide. La conductivité, également à valeur dans  $\mathbb{C}$  s'écrit  $\sigma = \sigma_r + i\sigma_i$ . Les relations avec les parties réelles et imaginaire de  $\epsilon$  sont donc :

$$\begin{cases} \sigma_r &= \omega \epsilon_0 \epsilon_i, \\ \sigma_i &= \omega \epsilon_0 (1 - \epsilon_r). \end{cases} \quad (1.30)$$

La partie réelle de la conductivité est ainsi reliée à la partie imaginaire de  $\epsilon$ . Quant à l'absorbance, elle s'écrit comme la moyenne temporelle de  $\vec{j} \cdot \vec{E}$  soit  $P_{abs} = \langle \vec{j} \cdot \vec{E} \rangle$ . En notation complexe pour des ondes monochromatiques, cela s'écrit  $P_{abs} = (1/2) \text{Re}(\vec{j} \cdot \vec{E}^*)$ . En remplaçant le courant par  $\sigma \vec{E}$ , nous obtenons  $P_{abs} = (1/2) \sigma_r \|\vec{E}\|^2$ . Il apparaît que l'absorbance est directement reliée à la partie réelle de la conductivité donc à la partie imaginaire de la fonction diélectrique soit

$$P_{abs} \propto \epsilon_i. \quad (1.31)$$

Notant que la divergence du champ électrique est nulle quand les charges externes sont absentes, les équations de Maxwell, dans ce cas, permettent d'écrire l'équation de propagation dans un milieu. Il vient

$$\Delta \vec{E} + \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon \vec{E} = 0. \quad (1.32)$$

Cette équation admet 2 solutions de la forme  $e^{\pm i k \vec{r} \cdot \vec{s}}$  avec  $k = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon}$  et  $\vec{s}$  la direction de propagation. Vient alors la définition de l'indice optique  $N = \sqrt{\epsilon}$ . Nous écrirons indice optique et fonction diélectrique de la forme suivante :

$$\begin{aligned} N &= n - i\kappa && \text{avec } (n, \kappa) \in \mathbb{R}_+^2, \\ \epsilon &= \epsilon_r + i\epsilon_i && \text{avec } (\epsilon_r, \epsilon_i) \in \mathbb{R} \times \mathbb{R}_-. \end{aligned} \quad (1.33)$$

Dans la mesure où l'onde ne peut que décroître le long de sa propagation, seule la solution de la forme  $e^{-i k \vec{r} \cdot \vec{s}}$  de l'équation (1.32) est acceptable. Les relations reliant  $N$  et  $\epsilon$  sont :

$$\begin{cases} \epsilon_r &= n^2 - \kappa^2, \\ \epsilon_i &= -2n\kappa. \end{cases} \quad (1.34)$$

## 1.2.2 Le modèle de Drude

Alors que la fonction diélectrique fait le lien entre les ondes électromagnétiques et la conductivité, le modèle de Drude fera le lien entre la valeur de la conductivité électrique et la description de la matière.

Le modèle de Drude est une façon simple de modéliser un métal ou un plasma. Très rustique, il reproduit qualitativement un certain nombre de propriétés optiques. Dans ce modèle, lorsque les atomes d'un élément métallique se rassemblent pour former un métal, les électrons de valence se détachent et se déplacent librement dans le métal, pendant que les ions métalliques restent intacts, immobiles [27]. Les électrons de valence forment un gaz dense traité par la théorie cinétique des gaz. La théorie du modèle de Drude est basée sur 4 hypothèses fondamentales :

1. Entre 2 collisions, les électrons sont libres et indépendants, toutes les interactions avec les autres particules sont négligées. Ils ne réagissent qu'au champ externe et leur trajectoire est régie par le principe fondamental de la dynamique  $\dot{v}_e = -eE/m_e$  où  $v_e$  et la vitesse d'un électron. En l'absence de champ externe, la trajectoire est donc supposée rectiligne uniforme.
2. Les collisions sont des événements instantanés. Comme dans la théorie cinétique des gaz, les électrons rebondissent sur les ions et éventuellement sur les autres électrons. Juste après la collision, en l'absence de champ extérieur la direction du déplacement est aléatoire donc en moyenne, la vitesse est nulle, il n'y a pas de courant. Pendant la collision, l'électron "perd la mémoire" de ses caractéristiques avant collision.
3. En moyenne, entre 2 collisions, un électron va voyager pendant un temps  $\tau$  appelé temps de relaxation. En présence d'un champ extérieur stationnaire, la vitesse moyenne sera  $\vec{v}_e^{(moy)} = -e\vec{E}\tau/m_e$ . Compte tenu de l'hypothèse précédente, seule la vitesse acquise depuis la dernière collision participe au courant. Nous définissons  $\nu = 1/\tau$  la fréquence de collision.
4. Les collisions sont le seul mécanisme responsable de l'équilibre thermodynamique local.

Le courant résultant de la vitesse moyenne des électrons s'écrit

$$\vec{j} = -n_e e \vec{v}_e^{(moy)} = \left( \frac{n_e e^2}{m_e \nu} \right) \vec{E}. \quad (1.35)$$

Le modèle de Drude permet de donner une interprétation à la loi d'Ohm puis d'en extraire une valeur pour la conductivité en courant continu :

$$\sigma_{DC} = \frac{n_e e^2}{m_e \nu}. \quad (1.36)$$

Une manière plus intuitive est d'introduire la fréquence de collision en l'interprétant comme une force de frottement. En se plaçant dans le référentiel de l'électron, sans tenir compte de sa vitesse thermique, le principe fondamental de la dynamique s'écrit :

$$\frac{\partial v_e}{\partial t} = -\frac{eE}{m_e} - \nu v_e. \quad (1.37)$$

En régime continu, cette équation s'intègre facilement et nous retrouvons la vitesse moyenne précédente. En régime sinusoïdal, la réponse à un champ de pulsation  $\omega$  est égale à :

$$v_e = -\frac{eE}{m_e} \frac{1}{(\nu + i\omega)}. \quad (1.38)$$

L'interprétation de cette équation peut se faire de la manière suivante. En l'absence de collision, l'électron oscille dans le champ laser en quadrature de phase donc il n'y a pas d'absorption puisque  $\langle \vec{j} \cdot \vec{E} \rangle = 0$ . Quand les collisions augmentent, la phase de l'électron se rapproche de la phase du champ laser et l'amplitude de son oscillation se réduit. À la limite  $\nu \gg \omega$ , l'électron et le champ sont en phase.

De manière analogue au cas du courant continu, la conductivité pour un champ variant en fonction du temps dans le cadre du modèle de Drude s'obtient en écrivant la densité de courant comme  $j = -n_e e v_e$ , il vient

$$\sigma(\omega) = \frac{\sigma_{DC}}{1 + i\omega/\nu}. \quad (1.39)$$

Les équations (1.29) et (1.39) permettent d'en déduire la fonction diélectrique, elle est égale à :

$$\epsilon = 1 - \frac{\omega_{pe}^2/\omega^2}{1 - i\nu/\omega} \quad \text{avec} \quad \omega_{pe}^2 = \frac{n_e e^2}{m_e \epsilon_0}. \quad (1.40)$$

Dans l'équation (1.40),  $\omega_{pe}$  représente la pulsation plasma électronique qui caractérise la fréquence de résonance propre d'une population électronique. Le modèle de Drude permet donc de relier la fonction diélectrique à 2 paramètres (densité électronique et fréquence de collision) qui caractérisent le gaz d'électrons libres. La fonction diélectrique dépend également de la pulsation de l'onde.

Sans collision, l'indice optique s'écrit  $N = \sqrt{1 - \omega_{pe}^2/\omega^2}$  donc la propagation d'une onde n'est possible que si  $\omega > \omega_{pe}$ . On définit ainsi la densité critique  $n_{cr}$ , densité électronique au delà de laquelle une onde ne peut plus se propager. L'indice optique devient complexe et l'onde évanescence. La densité critique s'écrit :

$$n_{cr} = \frac{m_e \epsilon_0 \omega^2}{e^2} = \frac{1.11 \times 10^{21}}{\lambda^2 [\mu\text{m}]} [\text{cm}^{-3}]. \quad (1.41)$$

Par ailleurs, en identifiant les parties réelles et imaginaires de la fonction diélectrique écrite sous la forme de l'équation (1.40), le système d'équations (2.5.4) se résout facilement. Il devient possible de calculer, sous l'hypothèse du modèle de Drude, la fréquence de collision et la densité électronique en connaissant la valeur numérique de la fonction diélectrique en utilisant les équations suivantes :

$$\begin{cases} \tilde{\nu} &= \epsilon_i/(\epsilon_r - 1), \\ \tilde{n}_e &= -\epsilon_i(1 + \tilde{\nu}^2)/\tilde{\nu}, \end{cases} \quad (1.42)$$

écrites avec les quantités normalisées  $\tilde{\nu} = \nu/\omega$  et  $\tilde{n}_e = n_e/n_{cr}$ . De plus, sachant que  $\epsilon_i = -2n\kappa < 0$ , en imposant de manière naturelle  $\nu > 0$ , la première équation du système (1.42) nous impose  $\epsilon_r - 1 < 0$ . Selon (1.34), il vient :

$$n^2 < 1 + \kappa^2. \quad (1.43)$$

Cette relation est une condition nécessaire (mais non suffisante) de validité du modèle de Drude. Elle est satisfaite dans le cas des métaux mais ne l'est évidemment pas dans le cas des diélectriques comme le verre pour lesquelles  $\kappa \simeq 0$  et  $n > 1$ .

Comme présenté sur la figure 1.8, le modèle de Drude reproduit un comportement important de l'aluminium, il est réfléchissant à partir d'une certaine longueur d'onde dite longueur d'onde de coupure. Elle se calcule sachant que l'aluminium dispose de 3 électrons en bande de conduction. En revanche, pour les métaux nobles, ce modèle est trop simpliste. Bien qu'il décrive le comportement optique principal lié aux électrons de conduction, c'est à dire le fait que la lumière se réfléchisse globalement à partir d'une certaine longueur d'onde, il faut tenir compte d'un comportement non libre des électrons, les processus de transitions interbande dont nous allons donner une description classique dans la suite.

### 1.2.3 L'oscillateur de Lorentz

Une bonne compréhension de la réponse en fréquence de l'indice de réfraction peut être obtenue en appliquant le modèle des oscillateurs classiques proposé par Henrick Antoon Lorentz en 1878. Pour modéliser le fait que les transitions responsables de l'absorption ne s'effectuent qu'à certaines fréquences déterminées par les bandes, le modèle suppose qu'il existe dans la matière des oscillateurs amortis ayant leur propre fréquence de résonance.

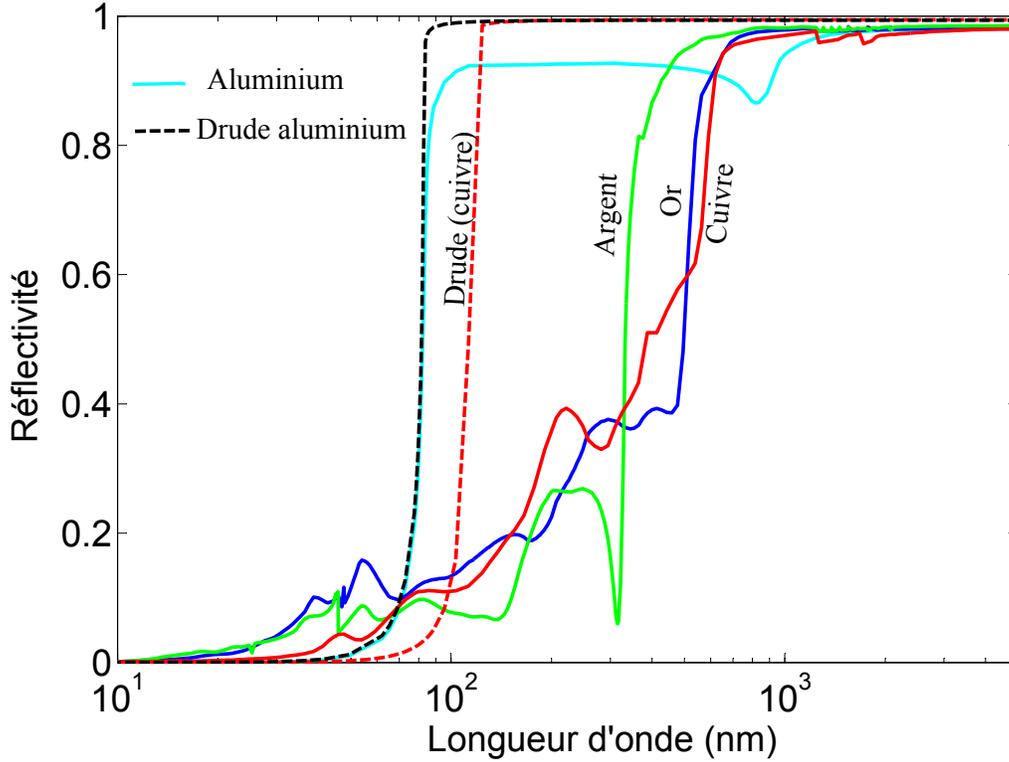


FIGURE 1.8 – Réflectivité à incidence normale de plusieurs métaux comparées au modèle de Drude. Il est calculé avec 3 électrons libres/atome et  $\nu = 7.14 \times 10^{13} \text{ s}^{-1}$  pour l'aluminium et avec 1 électron libre/atome et  $\nu = 4.6 \times 10^{13} \text{ s}^{-1}$  pour le cuivre.

Dans le cas d'un oscillateur unique, le déplacement  $x$  d'un électron est régi par une équation de mouvement de la forme [32,33] :

$$\frac{d^2x}{dt^2} + \nu \frac{dx}{dt} + \omega_0^2 x = \frac{-eE}{m_e}, \quad (1.44)$$

où  $\omega_0$  est la fréquence de résonance et  $\nu$  est ici le taux d'amortissement. Dans les solides, la présence d'un terme d'amortissement est la conséquence du fait que les dipôles oscillants peuvent perdre leur énergie par des processus collisionnels avec les phonons. Nous considérons l'interaction d'un électron avec une onde monochromatique de pulsation  $\omega$ . Afin de conserver le signe sur la convention introduite dans le cadre du modèle de Drude, nous écrivons le champ électrique sous la forme  $E(t) = E_0 \exp(i\omega t)$ . On obtient ainsi le mouvement d'un électron :

$$x(t) = \frac{eE(t)/m_e}{\omega^2 - \omega_0^2 - i\nu\omega}. \quad (1.45)$$

Il s'en suit une contribution résonante à la polarisation. Le déplacement des électrons par rapport à leurs positions d'équilibre crée un dipôle oscillant caractérisé par son moment dipolaire  $p(t) = -ex(t)$ . Comme la contribution de chaque atome s'ajoute, dans la mesure

où le solide est constitué de  $N$  atomes par unité de volume, la polarisation macroscopique est donnée par  $P(t) = -N e x(t)$ . Le déplacement électrique  $D$  est relié à la polarisation selon

$$D = \epsilon_0 E + P, \quad (1.46)$$

que l'on réécrit en faisant intervenir la fonction diélectrique :

$$D = \epsilon_0 \epsilon E. \quad (1.47)$$

Par identification, la fonction diélectrique s'écrit :

$$\epsilon = 1 - \frac{e^2 N}{m_e \epsilon_0} \frac{1}{(\omega^2 - \omega_0^2 - i\nu\omega)}. \quad (1.48)$$

dont nous avons tracé sur la figure 1.9 les parties réelles et imaginaires. La présence de la résonance est notable pour  $\omega = \omega_0$ , l'absorption y est maximum. La largeur à mi-hauteur de la transition est égale à  $\nu$ , en effet, la présence de  $\nu$  qui aura pour conséquence de réduire et d'élargir le pic d'absorption. Notons que  $\nu$  est homogène à une pulsation, à une raie de largeur  $\delta E$  correspond donc  $\nu = \delta E/\hbar$ .

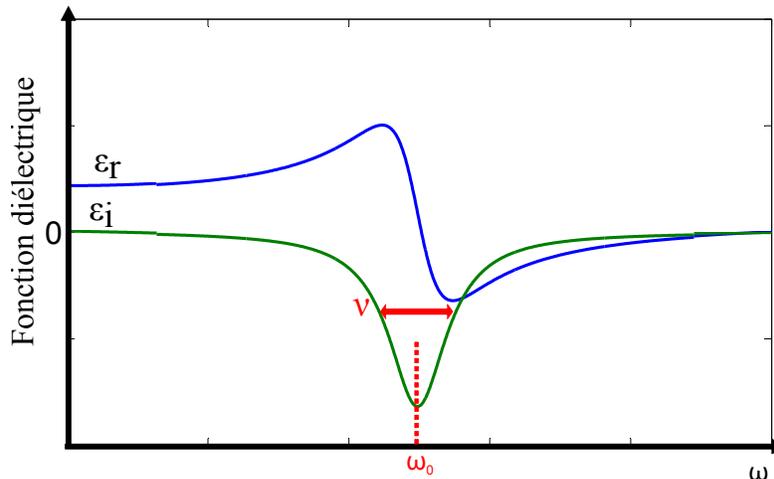


FIGURE 1.9 – Représentation des parties réelle et imaginaire de la fonction diélectrique. L'absorbance est proportionnelle à  $\epsilon_i$ , elle est maximale pour  $\omega = \omega_0$ . La largeur à mi-hauteur du pic d'absorption est égale à  $\nu$ , le taux d'amortissement.

### 1.2.4 Le modèle de Drude-Lorentz

En pratique, un milieu aura plusieurs fréquences de résonances, chaque transition associée à une fréquence ajoute sa contribution à la polarisation donc à la fonction diélectrique. Afin de retrouver les valeurs expérimentales, chaque oscillateur est pondéré par une force d'oscillateur phénoménologique  $f_i$ . Bien qu'il n'y ait pas d'explication en physique classique,

les forces d'oscillateurs sont associées en physique quantique aux probabilités de transitions [32]. Compte tenu de ces remarques, la fonction diélectrique se réécrit de la manière suivante :

$$\epsilon = 1 - \frac{e^2 N}{m_e \epsilon_0} \sum_k \frac{f_k}{(\omega^2 - \omega_k^2 - i\nu_k \omega)}, \quad (1.49)$$

ou  $\omega_k$  et  $\nu_k$  sont respectivement la pulsation et le terme d'amortissement d'une résonance particulière.

Pour répondre à la thématique du sujet de la thèse, nous écrivons différemment la fonction diélectrique. En effet, les atomes dans un solide sont très proches les uns des autres, la distance interatomique est approximativement égale à la taille des atomes. Les orbites externes des différents atomes se recouvrent et les niveaux d'énergie de l'atome isolé s'élargissent en bande. Une approche différente pour calculer la réponse diélectrique du système est de considérer le déplacement des électrons de chaque bande comme un courant de polarisation de densité  $j_k = -n_k e v_k$  avec  $n_k$  la densité électronique de la bande résonante  $k$ . Cette méthode de calcul est analogue à celle utilisée dans le cadre du modèle de Drude. Le courant total est la somme des courants de chaque oscillateur. Il s'écrit

$$j = \sum_k j_k. \quad (1.50)$$

On dérive l'équation (1.45) avant de remplacer la vitesse  $v_k$  dans la somme. On sort le champ  $E$  de la somme puis on identifie la conductivité. Par le biais de l'équation (1.29), prenant soin d'ajouter la force d'oscillateur, la fonction diélectrique s'écrit :

$$\epsilon = 1 - \frac{e^2}{m_e \epsilon_0} \sum_k \frac{f_k n_k}{(\omega^2 - \omega_k^2 - i\nu_k \omega)}, \quad (1.51)$$

où  $\nu_k$  est la largeur spectrale de l'oscillateur lié à une bande  $k$ . Dans le cas des métaux, il nous faut ajouter le terme de Drude prenant en compte les électrons quasi-libres en bande de conduction, nous obtenons finalement :

$$\epsilon = 1 - \frac{e^2}{m_e \epsilon_0} \left( \sum_k \frac{f_k n_k}{(\omega^2 - \omega_k^2 - i\nu_k \omega)} + \frac{f_c n_c}{(\omega^2 - i\nu_c \omega)} \right). \quad (1.52)$$

avec  $f_c, n_c$  et  $\nu_c$  respectivement la force d'oscillateur, la densité électronique et la fréquence de collision associée à la bande de conduction.

### 1.2.5 Application aux métaux nobles

La fonction diélectrique ainsi décrite par l'équation (1.52) est une forme très générale. Le nombre d'oscillateurs et les paramètres qui les composent doivent être ajustés pour décrire un

matériau particulier. Dans les métaux nobles, la présence de la bande  $d$  à proximité du niveau de Fermi va avoir des conséquences sur la réponse dans le domaine optique du matériau et les oscillateurs de Lorentz vont permettre de la modéliser.

### Transitions interbandes

Comme présenté au §1.1.2.1, les densités d'états - à proximité du niveau de Fermi - des métaux nobles sont formées par les bandes  $s$  et  $d$ . La bande externe  $s$  comprend les électrons de conduction et est raisonnablement bien décrite par le modèle des électrons libres avec une densité d'état en  $\varepsilon^{1/2}$ . La bande  $d$  couvre un domaine étroit en énergie et se trouve 2 à 5 eV sous le niveau de Fermi. Des transitions interbandes sont possibles depuis la bande  $d$  vers les états libres de la bande  $s$  au dessus du niveau de Fermi comme présentées sur la figure 1.10. L'énergie minimum pour qu'une telle transition se réalise correspond à l'énergie entre la borne supérieure de la bande  $d$  et l'énergie de Fermi. À la lecture des DOS de chaque métal, elle est d'environ 1.7 eV pour le cuivre et l'or et est d'environ 3 eV pour l'argent. Une transition interbande est donc responsable de l'absorption des photons de longueurs d'ondes inférieures à 730 nm pour le cuivre et l'or et de 430 nm pour l'argent (voir figure 1.8). Les transitions interbandes ont des conséquences directes sur la fonction diélectrique, elles peuvent être identifiées avec les structures de ses parties réelles et imaginaires [34,35].

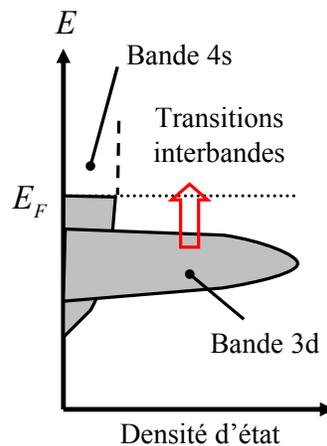


FIGURE 1.10 – Représentation schématique d'une transition interbande entre les bandes  $4s$  et  $3d$  du cuivre. Le même schéma s'applique aux autres métaux nobles.

### Fit de Drude Lorentz

Les valeurs réelles et imaginaires de la fonction diélectrique (issues de mesures expérimentales) ont été utilisées par plusieurs équipes [36,37] pour retrouver les coefficients des oscillateurs de Lorentz correspondant au mieux aux valeurs tabulées. La table 1.1 présente un exemple des coefficients obtenus par une équipe [36]. La complexité de la forme de la

1.2. RÉPONSE D'UN MÉTAL À UNE ONDE ÉLECTROMAGNÉTIQUE : LA  
FONCTION DIÉLECTRIQUE

---

Métal	Au					
N° oscillateur	0	1	2	3	4	5
$\hbar\omega_p$ [eV]	9.03					
$f_k n_k$ [ $10^{28}\text{m}^{-3}$ ]	4.494	0.142	0.059	0.420	3.554	25.92
$\hbar\nu_k$ [eV]	0.053	0.241	0.345	0.870	2.494	2.214
$\hbar\omega_k$ [eV]	-	0.415	0.830	2.969	4.304	13.32
Métal	Cu					
N° oscillateur	0	1	2	3	4	-
$\hbar\omega_p$ [eV]	10.83					
$f_k n_k$ [ $10^{28}\text{m}^{-3}$ ]	4.890	0.518	0.885	6.150	5.427	-
$\hbar\nu_k$ [eV]	0.030	0.378	1.056	3.213	4.305	-
$\hbar\omega_k$ [eV]	-	0.291	2.957	5.300	11.18	-

TABLE 1.1 – Valeurs des coefficients des fits de la fonction diélectrique de l’or et du cuivre données dans la référence [36]. Le terme de Drude est indiqué 0.  $\omega_p$  est donné à titre indicatif.

fonction diélectrique issue des multiples transitions interbandes possibles et apparaissant à diverses énergies de photons ne peut pas être décrite précisément avec un simple modèle de Drude Lorentz. En effet, avec un tel modèle, l’obtention du fit ne peut être obtenu qu’en ajoutant une série de transitions artificielles pouvant augmenter sensiblement le nombre d’oscillateurs et, en conséquence, augmenterait le nombre de paramètres. À la limite, il est clair qu’avec un nombre suffisant d’oscillateurs, toutes les mesures peuvent être modélisées mais les paramètres dans les modèles pourraient n’avoir aucun sens physique. Néanmoins, si le nombre d’oscillateurs n’est pas excessivement élevé, leurs présences reflètent une part de vérité. Comme présenté sur les graphiques de la figure 1.11, afin de modéliser l’absorption  $\sim \epsilon_i$  dans la gamme 2–6 eV, deux oscillateurs de Lorentz ont été utilisés pour l’or comme pour le cuivre. Leurs énergies et leurs largeurs de bande correspondent, comme attendu, à celles des bandes  $d$ . Pour l’or, au minimum deux transitions interbandes particulières sont attendues dans cette gamme d’énergie [37, 38]. C’est l’une des raisons pour laquelle deux oscillateurs ont été utilisés. Notons également que, comme présenté sur la figure 1.11, pour des photons de 1.5 eV - soit une sonde à 800 nm - le terme de Drude est dominant pour l’or alors qu’il ne l’est pas pour le cuivre. L’étude de l’or est plus simple dans ce domaine d’énergie.

### Simplification de l’écriture de $\epsilon$

L’un des enjeux de cette thèse est de mesurer expérimentalement la fonction diélectrique d’un matériau chauffé et d’en interpréter les mesures. La question n’est pas ici d’identifier chaque transition interbande indépendamment via un diagramme de bande mais de discuter des transitions interbandes de la bande  $d$  vers la bande de conduction dans leur globalité.

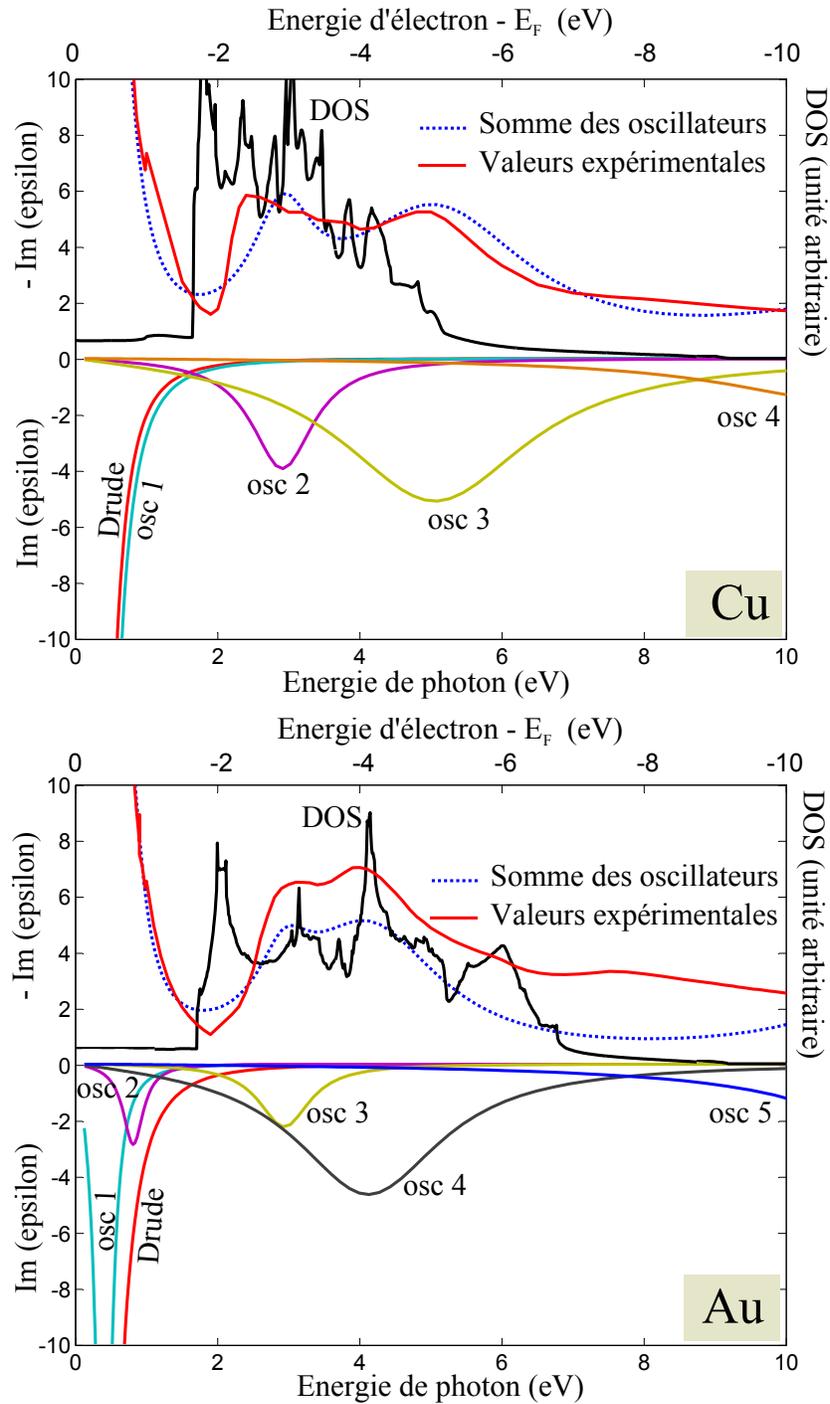


FIGURE 1.11 – Représentation de la partie imaginaire de chaque oscillateur pour le cuivre et l’or. Leurs positions et leurs largeurs sont comparées à la bande  $d$  représenté par la DOS. Son influence sur la fonction diélectrique est modélisé par les oscillateurs 3 et 4 pour l’or et les oscillateurs 2 et 3 pour le cuivre. Sont représentées également  $\epsilon_i$  issu des valeurs tabulées et du fit. Par une meilleurs visibilité, elles ont été tracées dans la zone positive du graphique.

On cherche ici à minimiser le nombre d'oscillateurs utilisés dans le modèle afin de réduire le nombre de paramètres ajustables en présence. Pour cette raison, dans l'écriture de  $\epsilon$ , nous ne conserverons comme variable que les oscillateurs jouant un rôle dans l'interaction avec un laser optique. Le laser dont nous disposons est à une énergie de photon de 1.5 eV. Il sera sensible aux électrons de conduction modélisés par le terme de Drude. Doublé en fréquence, les photons de sonde à 3 eV seront sensibles aux transitions interbandes donc seront typiquement sensibles aux 2 oscillateurs du fit modélisant la bande  $d$ . Au total, en utilisant le fit présenté ci-dessus, 3 termes dans l'écriture de  $\epsilon$  sont nécessaires pour modéliser l'interaction.

Pour l'or, en d'autres mots, les oscillateurs numérotés 1,2 et 5 seront considérés comme constant. On réécrit la fonction diélectrique de la manière suivante :

$$\epsilon = \epsilon_{r0}(\omega) - \frac{e^2}{m_e \epsilon_0} \left( n_c \frac{f_c}{(\omega^2 - i\nu_c \omega)} + n_d \sum_{i=3}^4 \frac{f_i}{(\omega^2 - \omega_i^2 - i\nu_i \omega)} \right) \quad (1.53)$$

où  $\epsilon_{r0}(\omega)$  constitue la somme des oscillateurs 1,2 et 5 et  $n_d$  la densité électronique en bande  $d$ . On utilisera cette forme d'écriture lors de l'interprétation des résultats expérimentaux concernant l'étude de la fonction diélectrique de l'or en régime hors équilibre. Bien que cette description phénoménologique soit très grossière, elle permettra d'apporter une image qualitative et quantitative lors de l'interprétation.

### 1.3 Étude des collisions

Dans les métaux, les électrons sont constamment en mouvement. Ils se déplacent et collisionnent avec les particules environnantes. Lors de l'interaction d'un champ laser avec un électron, ce dernier oscille sous l'effet du champ électrique. Il acquiert une composante en vitesse supplémentaire et collisionne également avec les particules environnantes. Les processus collisionnels sont d'une grande importance pour la physique de l'état solide comme pour l'étude de l'interaction laser plasma. Les collisions se manifestent par un changement important de quantité de mouvement pendant un intervalle de temps assez court, de l'ordre de la femtoseconde à quelques picosecondes. Les collisions sont nécessaires pour établir l'équilibre thermodynamique, l'énergie se transfère de particules en particules. La fréquence de collision est un paramètre essentiel qui intervient dans l'estimation des coefficients de transport comme les conductivités thermiques et électriques. Alors que plusieurs modèles théoriques tentent de décrire les collisions, les valeurs des conductivités dans le domaine de la WDM sont encore mal connues. Elles interviennent dans de nombreux domaines comme l'ablation laser pour décrire l'absorption de l'énergie laser et son transport vers l'intérieur de la cible. Elles sont également d'une grande importance pour décrire le transport d'électrons accélérés

dans le cadre de l'allumage rapide pour la fusion par confinement inertiel.

La fréquence de collision électronique connaît principalement trois régimes distincts du solide froid au plasma chaud :

- Dans la matière froide, les collisions électrons-phonons dominent. Elles évoluent selon  $\nu_{e-ph} \propto T_i$ . Les électrons sont dégénérés avec  $T_e \ll T_F$
- Pour  $T_e \simeq T_F$ , les collisions électron-électron dominent avec  $\nu_{e-e} \propto T_e^2$
- Les plasmas chauds dominés par le régime de Spitzer sont gouvernés par les collisions coulombiennes. Les collisions évoluent selon  $\nu_{sp} \propto 1/T_e^{3/2}$ . Les électrons sont classiques avec  $T_e \gg T_F$

### 1.3.1 Plasma classique

Dans un plasma idéal, la fréquence de collision correspond aux interactions entre les ions et les électrons. Son expression est donnée par la théorie des plasmas, on utilisera la formulation de Spitzer [39, 40]

$$\nu_{sp} = \frac{4}{3}(2\pi)^{1/2}k_{sp} \frac{Z^* e^4 m_e n_e}{(4\pi\epsilon_0)^2 (m_e k_B T_e)^{3/2}} \ln \Lambda, \quad (1.54)$$

où  $\ln \Lambda$  représente le logarithme Coulombien et  $k_{sp}$  est un facteur sans dimension dépendant de la fréquence d'oscillation  $\omega$  de l'onde électromagnétique. Dans la limite  $\omega \gg \nu_{sp}$ ,  $k_{sp}$  vaut 1 par contre, dans la limite  $\omega \ll \nu_{sp}$ ,  $k_{sp}$  vaut  $3\pi/32$ . La section efficace de collision est augmentée d'un facteur  $\ln \Lambda$  pour rendre compte des collisions entre un ion et les électrons éloignés d'une distance de l'ordre de  $\lambda_D$ . Ces collisions provoquent de faibles angles de déviations mais deviennent importantes par leur grand nombre. Le logarithme coulombien s'écrit généralement avec  $\Lambda = b_{max}/b_{min}$  où  $b_{min}$  et  $b_{max}$  sont respectivement les paramètres d'impact minimum et maximum.  $b_{min}$  est égal à la distance la plus grande entre les longueurs de Landau et de Debye alors que  $b_{max}$  est égal à la longueur de Debye. Toutefois, pour décrire l'absorption laser, il est souhaitable d'écrire  $b_{max} = \sqrt{k_B T_e / m_e} / \max(\omega_{pe}, \omega)$  [41]. Afin d'étendre la définition du logarithme coulombien dans le domaine de température de la WDM en évitant les valeurs négatives de  $\ln \Lambda$ , plusieurs formulations sont possibles et disponibles dans la littérature (voir [41] par exemple), nous retiendrons la formulation suivante utilisée dans le modèle Spitzer [42–44] :

$$\ln \Lambda = \frac{1}{2} \ln \left[ \left( 1 + \left( \frac{b_{max}}{b_{min}} \right)^2 \right) \right] \quad (1.55)$$

Dans le régime de Spitzer, la fréquence de collision croît lorsque la température diminue. Pour des températures avoisinant la température de Fermi, le libre parcours moyen des électrons calculé par l'équation (1.54) peut devenir inférieur à la distance moyenne entre deux ions donc cette équation perd son sens physique. Dans cette gamme de température, le plasma

est fortement collisionnel et les électrons partiellement dégénérés donc la description théorique est délicate. Néanmoins, il est raisonnable de penser que le libre parcours moyen des électrons ne peut être plus petit que la distance entre deux ions  $d = (3/4\pi n_i)^{1/3}$ . Eidmann *et al* [43] introduisent alors la condition  $\nu_e < \nu_{cr}$  ou  $\nu_{cr}$  est la fréquence critique

$$\nu_{cr} = v_e/d, \quad (1.56)$$

avec  $v_e$  la vitesse caractéristique de l'électron. Elle est égale à la vitesse de Fermi pour le solide froid et est égale à la vitesse thermique pour les plasmas chauds. La liaison entre les deux régimes se fait par le biais de la moyenne harmonique de ces deux vitesses pour obtenir :

$$v_e = \sqrt{v_F^2 + \frac{k_B T_e}{m_e}}, \quad (1.57)$$

avec  $v_F = \hbar(3\pi^2 n_e)^{1/3}/m_e$  la vitesse de Fermi.

### 1.3.2 Domaine WDM

Lorsque la température électronique est très faible devant la température de Fermi, les électrons sont dégénérés et occupent presque tous les niveaux d'énergie disponibles dans la densité d'état du matériel considéré. En effet, la fonction de distribution électronique se rapproche d'une fonction type Heaviside et les électrons de plus haute énergie sont proches de la surface de Fermi. Dans ces conditions, très peu de place dans l'espace des phases est disponible et le principe d'exclusion de Pauli réduit le taux de collision. Les collisions électron-électron sont très peu fréquentes et la fréquence de collision ne dépend pas de  $T_e$ . Le régime collisionnel est alors gouverné par l'interaction entre les électrons et les vibrations du réseau ionique (phonons). Une expression de cette fréquence a été donnée par Yakovlev et Urpin [43, 45], elle s'écrit :

$$\nu_{e-ph} = \frac{k_s}{4\pi\epsilon_0} \frac{e^2}{\hbar v_F} \left(2 - \frac{v_F^2}{c^2}\right) \left[1 + \left(0.13 \frac{\hbar\omega_{pi}}{k_B T_i}\right)^2\right]^{-1/2} \frac{k_B T_i}{\hbar}. \quad (1.58)$$

avec  $\omega_{pi}$  la fréquence plasma ionique et  $k_s$  une constante numérique qu'il faudra fixer. Dans la limite où la température des ions est supérieure à la température de Debye  $k_B T_i \gtrsim \hbar\omega_{pi}$ , sachant que la vitesse de Fermi est de l'ordre de 1000 km.s<sup>-1</sup> soit largement inférieure à  $c$ , nous simplifions alors cette expression pour obtenir

$$\nu_{e-ph} \simeq \frac{k_s}{2\pi\epsilon_0} \frac{e^2 k_B T_i}{\hbar^2 v_F}. \quad (1.59)$$

En pratique, tout comme  $k_{sp}$ , la constante  $k_s$  prendra des valeurs différentes si les collisions sont considérées en régime continu (DC) ou si les électrons sont excités par une onde électromagnétique optique. En régime continu, elle est ajustée de manière à retrouver les valeurs de

Métal	Au	Cu	Al
Conductivité [ $10^6\Omega^{-1}\text{m}^{-1}$ ]	45.5	59.2	37.5
$\hbar\nu_c$ [eV]	0.053	0.030	0.047
$k_s$ (optique)	0.56	0.36	0.70
$k_s$ (DC)	0.26	0.32	1.20

TABLE 1.2 – Valeur de la constante  $k_s$  pour plusieurs métaux.  $\nu_c$  est la fréquence de collision en bande de conduction.

conductivité à froid des métaux en insérant cette fréquence de collision dans l'équation (1.36) de la conductivité donnée par le modèle de Drude. En régime optique, elle est calculée de manière à retrouver les valeurs des fréquences de collisions en bande de conduction donnée par le fit de Drude Lorentz [36]. Les valeurs pour plusieurs métaux sont explicitées dans le tableau 1.2.

Comme précisé précédemment, à basse température  $\nu_{e-e}$  est faible devant  $\nu_{e-ph}$ . En revanche, lorsque la température augmente, de la place devient disponible dans l'espace des phases et les collisions deviennent possibles. La place disponible se trouve dans les niveaux partiellement occupés dans une coquille de largeur  $k_B T_e$  autour de  $T_f$ . Suivant Landau dans la théorie du liquide de Fermi, suite à des considérations qualitatives, N.W.Ashcroft et David Mermin [27] en déduisent que  $\nu_{e-e}$  est proportionnelle à  $T_e^2$  puis ils en donnent une estimation quantitative :

$$\nu_{e-e} = A_\nu \frac{k_B T_e^2}{\hbar T_F} \quad (1.60)$$

où  $A_\nu$  est une constante sans dimension dépendante du matériau, elle peut varier entre 1 et 100. Par ailleurs, la valeur  $A_\nu$  va dépendre de la pulsation de l'onde excitant le milieu. Dans les liquides, le processus Umklapp est impossible donc les collisions  $e - e$  ne contribue pas à l'absorption optique [46].

### 1.3.3 Fréquence de collision électronique effective

Après avoir explicité chaque contribution aux collisions indépendamment, nous cherchons à obtenir une expression des collisions électroniques rendant compte de la prédominance de chaque contribution dans une gamme de température considérée. En première approximation, si les différentes contributions sont indépendantes, on peut supposer que les probabilités de transition s'ajoutent. Pour les basses températures  $T_e \ll T_F$ , seules les contributions  $e - e$  et  $e - ph$  sont pertinentes. On utilise alors la règle de Matthiessen [27] :

$$\nu_e = \nu_{e-e} + \nu_{e-ph} \quad (1.61)$$

Dans la mesure où la résistivité  $\rho = 1/\sigma \propto \nu$  où  $\sigma$  est la conductivité, les résistivités de chaque contribution s'ajoutent. En réalité, le taux de transition  $e - e$  dépend fortement de la configuration électronique à un instant  $t$ . L'influence d'un mécanisme sur l'autre n'est pas nécessairement négligeable et l'utilisation de la règle de Matthiessen est mise en doute [47].

Eidmann *et al* [43] proposent une interpolation entre les régimes du solide froid et du plasma idéal lorsque  $T_e = T_i$ . De manière à maximiser chaque contribution dans son régime de température, ils utilisent la moyenne harmonique et écrivent :

$$\nu_e^{-1} = \nu_{e-ph}^{-1} + \nu_{sp}^{-1} \quad (1.62)$$

La valeur maximale de  $\nu_e$  est atteinte pour des températures de l'ordre de quelques eV. Dans la gamme des hautes températures pour  $\nu_{e-ph}$  et des basses températures pour  $\nu_{sp}$ , l'équation (1.62) n'est plus valable. Ils ajoutent alors la condition  $\nu_e \leq \nu_{cr}$ .

Suivant cette idée mais conscients que ce modèle s'adapte mal aux problématiques de l'interaction laser-matière à impulsions ultra-courtes dans laquelle on rencontre des régimes fortement hors équilibre avec des températures électroniques largement supérieures aux températures ioniques, en 2007 B.Chimier *et al* [44] réécrivent l'expression de  $\nu_e$  en y incorporant les fréquences de collisions  $e - e$  via la règle de Mathiessen.

$$\nu_e^{-2} = (\nu_{e-ph} + \nu_{e-e})^{-2} + \nu_{cr}^{-2} + \nu_{sp}^{-2} \quad (1.63)$$

Notons qu'à la différence de Eidmann *et al*, la fréquence critique est directement introduite dans l'expression de  $\nu_e$ . L'introduction de  $\nu_{e-e} \propto T_e^2$  améliore le modèle qui peut être utilisé dans un régime hors-équilibre pour  $T_i \ll T_e$ .

Dans l'équation (1.63), la densité électronique apparaît implicitement pas le biais de la température de Fermi dont l'estimation est nécessaire dans les termes  $\nu_{e-ph}$  et  $\nu_{e-e}$ . La relation entre densité électronique et température dans notre cas est traitée par intégration de la densité d'état comme présenté en section 1.1.2.2 jusqu'à une température de 6 eV.

Sur le graphique 1.12 sont tracées les fréquences de collision dans les régimes optique et DC. Comme attendu, les collisions électron-phonon dominent dans le régime des basses températures. En régime optique, le temps de collision  $\tau_{e-ph} = 1/\nu_{e-ph}$  est de 12 fs soit légèrement supérieur aux temps de cycle optique, respectivement 2.6 et 1.3 fs à 800 et 400 nm. Notons que dans notre modèle, les collisions électron-phonon en régime optique ne dépendent pas de la fréquence laser. Elles proviennent du terme de Drude issu des fits du modèle de Drude Lorentz dont les coefficients sont constants<sup>3</sup> pour toutes les longueurs d'ondes<sup>3</sup>. En régime

3. Si un simple modèle de Drude est utilisé, sachant que la forme de la fonction diélectrique tabulée ne

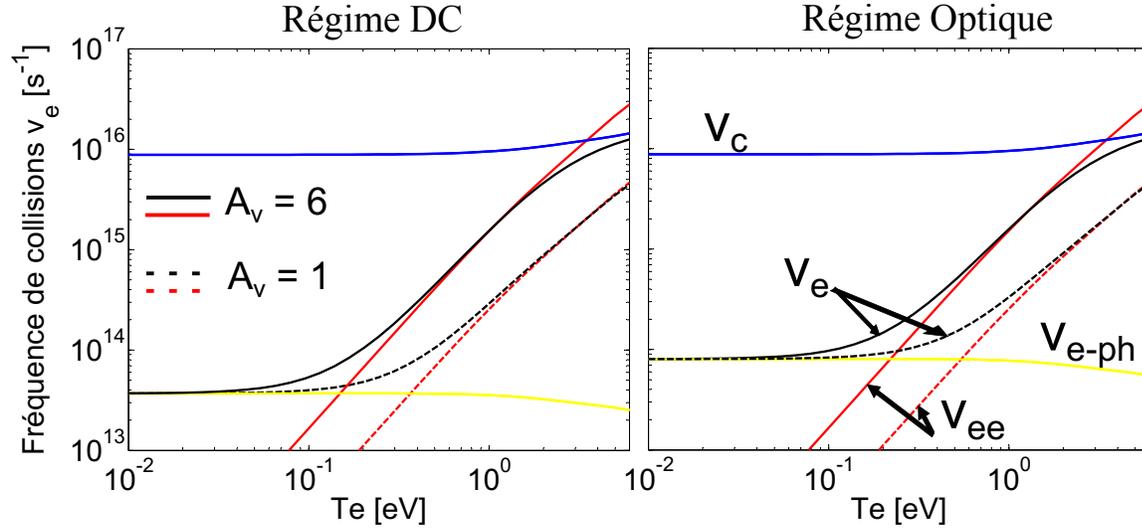


FIGURE 1.12 – Évolution des fréquences de collisions électroniques optiques et DC en fonction de la température pour  $T_i = 300^\circ\text{K}$  selon l'équation (1.63) pour l'or dans le régime des faibles températures avec  $A_\nu = 1$  et  $6$ . La valeur de ce coefficient est ajustable et demande toujours à être fixée [46].  $k_s = 0.26$  en régime DC et  $0.56$  en optique selon le tableau 1.2. La relation  $n_e(T_e)$  est calculée par intégration de la DOS (cf graphique 1.7).

DC, pour des températures faibles devant celle de Fermi, les collisions sont moins fréquentes qu'en régime optique. Les temps de collisions sont alors d'une trentaine de femtosecondes.

Pour des températures plus élevées, de  $1000\text{ K}$  à la température de Fermi, les fréquences de collisions augmentent et sont dominées par les collisions électron-électron, elles évoluent en  $T_e^2$ . Les temps de collisions sont alors largement plus faible que les temps de cycle optique et les fréquences sont quasiment identiques en régime DC et en régime optique.

Pour des températures nettement plus élevées que  $T_F$ , le matériau entre dans le régime de Spitzer et la fréquence de collision diminue, elle évolue en  $T_e^{-3/2}$ .

## 1.4 Dépôt de l'énergie

Afin de transférer un maximum d'énergie depuis le laser vers la matière, de nombreuses études sont consacrées à l'absorption laser. Différents processus sont à l'origine de l'absorption, chacun étant plus ou moins efficace selon l'intensité laser, la forme de gradient du densité,

suit pas parfaitement celle prédite par ce modèle, notamment à cause des transitions interbandes, la valeur de la fréquence de collision calculée afin de retrouver les valeurs de cette fonction diélectrique sur cible froide dépendra de la longueur d'onde.

l'angle d'incidence et la polarisation. À intensité élevée, on dénombre plusieurs mécanismes comme :

- Effet de peau anormal [48, 49]
- Chauffage d'écrantage (Effet Brunel [49, 50])
- chauffage pondéromoteur ( $J \times B$  Heating [51])

Il existe aussi le mécanisme d'absorption résonante. Il s'applique en polarisation P uniquement pour une onde en incidence oblique. Le laser de pompe des expériences dont nous reparlerons dans la suite est à incidence normale ou quasi normale ( $5^\circ$ ), ce mécanisme est donc inexistant. En revanche, le laser de sonde, à  $45^\circ$  d'incidence, y sera sensible. Son influence sur la sonde sera réalisée de manière numérique par la résolution des équations d'Helmholtz (cf 3.2.4).

Les intensités laser pertinentes dans le cadre de cette thèse visant à étudier la WDM sont relativement faible, autour de  $10^{12} - 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ . Les collisions sont donc le mécanisme d'absorption principal. L'absorption des photons se fait par Bremsstrahlung inverse lors des collisions entre particules et est effective sur une épaisseur de peau, épaisseur sur laquelle se propage le laser de pompe dans la cible. Son expression s'obtient en écrivant le champ électrique dans un matériau homogène d'indice  $N$  :

$$E(x) = E_0 e^{-ik_0 N x} \quad (1.64)$$

avec  $k_0$  le vecteur d'onde dans le vide. En écrivant  $N = n - i\kappa$ , on obtient

$$E(x) = E_0 e^{-ik_0 n x} e^{-k_0 \kappa x}. \quad (1.65)$$

Le champ électrique se réduit donc d'un facteur  $1/e$  après une propagation sur une épaisseur de peau  $\delta$  telle que  $-k_0 \kappa \delta = -1$  avec  $k_0 = 2\pi/\lambda$  d'où :

$$\delta = \frac{\lambda}{2\pi\kappa} \quad (1.66)$$

Même sans collision pour un plasma surdense, l'onde ne se propage pas et l'énergie est réfléchi. Par exemple, en écrivant la fonction diélectrique (Eq(1.40)) sans le terme de collision  $\epsilon = 1 - \omega_{pe}^2/\omega^2$ , et pour  $\omega \ll \omega_p$ , on retrouve la formulation bien connue de l'épaisseur de peau :

$$\delta = \frac{c}{\omega_{pe}} \quad (1.67)$$

En pratique, nous serons amenés à utiliser  $\delta^{(I)}$  l'épaisseur de peau en intensité, épaisseur sur laquelle l'intensité est diminuée d'un facteur  $1/e$  qui s'écrit :

$$\delta^{(I)} = \frac{\lambda}{4\pi\kappa}. \quad (1.68)$$

S'il y a des collisions, de l'énergie est dissipée par effet Joule. En effet, comme présenté au §1.2.1 la puissance absorbée s'écrit :

$$P_{abs} = (1/2)\sigma_r||\vec{E}_t||^2 \quad (1.69)$$

où  $E_t$  est le champ transmis à l'interface vide-milieu. Comme nous l'avons vu au §1.2.2 et §1.2.3, la partie réelle de la conductivité est non nulle uniquement en présence de collision et d'amortissement, d'où le terme d'absorption collisionnelle.

## 1.5 Évolution de la température électronique

Nous cherchons ici une manière simple d'obtenir un ordre de grandeur de la température électronique après le dépôt laser afin d'avoir d'une part, une compréhension globale du mécanisme responsable de l'élévation de la température et d'autre part, une meilleure appréciation des fluences laser à utiliser lors des expériences<sup>4</sup>. Sachant que (notamment en régime hors équilibre), les électrons seront les premières particules à recevoir l'énergie laser, nous nous intéressons à la réponse d'un gaz d'électrons dégénérés suite au dépôt d'énergie.

### 1.5.1 Chauffage du nuage électronique

La densité volumique d'énergie d'un gaz d'électrons indépendants est donnée par la somme des énergies des niveaux occupés multipliée par la densité de chaque niveau. Elle s'écrit :

$$E_e = \int_0^\infty g(\varepsilon) f(\varepsilon) \varepsilon d\varepsilon. \quad (1.70)$$

La capacité calorifique s'écrit comme la variation de l'énergie totale du gaz d'électrons en fonction de la température à volume et nombre de particules constants :

$$C_{ve} = \left( \frac{\partial E_e}{\partial T_e} \right)_{V,N} = \int_0^\infty \frac{\partial f(\varepsilon, \mu, T_e)}{\partial T_e} g(\varepsilon) \varepsilon d\varepsilon \quad (1.71)$$

À température modérée ( $T_e \ll T_F$ ), la capacité calorifique s'obtient en utilisant le développement de Sommerfeld [27] dans lequel elle évolue linéairement avec la température :

$$C_{ve} = \gamma T_e. \quad (1.72)$$

Dans le modèle du gaz d'électrons libres, le coefficient  $\gamma$  dépend de la densité électronique en bande de conduction.

$$\gamma = \frac{\pi^2}{2} k_B N_e \frac{1}{T_F}. \quad (1.73)$$

---

4. En pratique, lors de l'interprétation des mesures expérimentales, nous préférons estimer la température électronique autrement, en raisonnant sur la mesure de densité électronique en bande de conduction.

À température intermédiaire ( $T_e \approx T_F$ ), le développement de Sommerfeld n'est plus valide et la capacité calorifique se calcule en prenant en compte la DOS des matériaux considérés [29] par intégration de la partie droite de l'équation (1.71).

A température élevée pour  $T_e \gg T_F$ , la capacité calorifique est constante et correspond à celle du gaz parfait

$$C_{ve} = \frac{3}{2}k_B N_e. \quad (1.74)$$

La capacité calorifique calculée pour l'aluminium est présentée sur le graphique 1.13. Pour un métal simple comme l'aluminium, la densité d'état suit la forme générale en  $\sqrt{\varepsilon}$  prédite par le modèle du gaz d'électrons libres et le comportement de la capacité calorifique prédit par le développement de Sommerfeld et par intégration de le DOS est le même jusqu'à 2 eV.

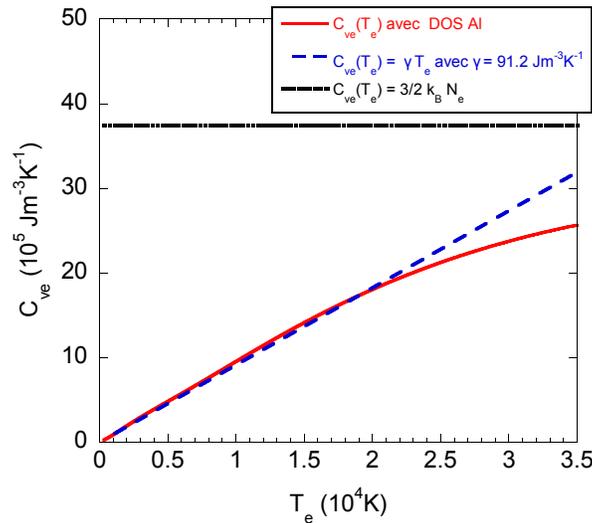


FIGURE 1.13 – Évolution de la capacité calorifique électronique de l'aluminium. La courbe rouge pleine est issue de la référence [29]. Le coefficient  $\gamma$  est calculé depuis l'équation (1.73).

En revanche, pour les métaux nobles (cuivre, argent et or), la présence de la bande  $d$  à proximité du niveau de Fermi va modifier le nombre d'électrons en bande de conduction pour des températures électroniques au dessus de 3000 K et, comme présenté sur la figure 1.14, la variation de la capacité calorifique avec la température ne sera plus linéaire.

## 1.5.2 Estimation de la température électronique

Pour l'interaction laser matière, l'intérêt d'avoir décrit la capacité calorifique électronique est de pouvoir faire une estimation de la température électronique après le dépôt laser. En effet, connaissant la densité volumique d'énergie absorbée, par intégration de l'équation

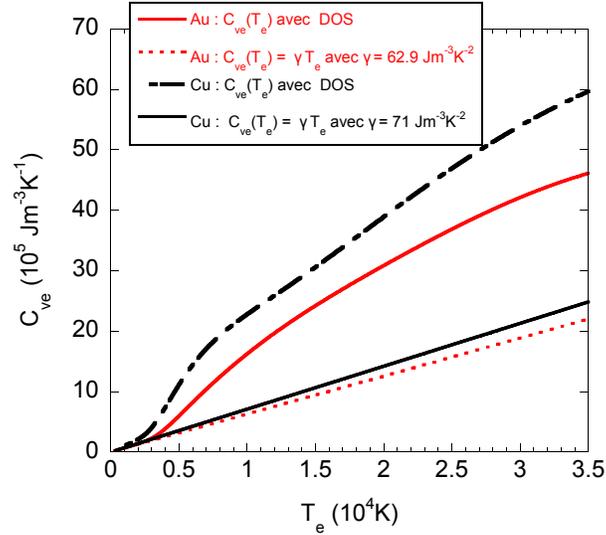


FIGURE 1.14 – Évolution de la capacité calorifique électronique du cuivre et de l’or. Les courbes prenant en compte les densités d’états sont issues de la référence [29]. Les coefficients  $\gamma$  sont calculés depuis l’équation (1.73).

$C_{ve}(T_e) = (\partial E_e / \partial T_e)_{V,N}$ , nous remontons ainsi à une température électronique. Cette méthode consiste à donner un ordre de grandeur mais n’est pas exacte notamment car, comme nous le verrons ensuite, le volume dans lequel l’énergie est déposée est mal connu. En revanche, certaines hypothèses inhérentes peuvent être justifiées :

- Cette méthode suppose que l’énergie n’a été absorbée que par les électrons. En effet, les temps d’impulsions de laser de pompe sont de 30 fs donc les impulsions sont largement plus courtes que le temps caractéristique de développement hydrodynamique du système ionique. Les ions restent quasi-immobiles et leur énergie n’est pas modifiée (régime hors-équilibre). Ce comportement est confirmé par une simulation réalisée avec le code hydrodynamique à deux températures ESTHER (voir Annexe A) sur une cible massive en or. À une fluence de laser incidente de  $0.6 \text{ J/cm}^2$ , au bout de 300 fs dans une maille située 10 nm à l’intérieur de la cible, la température électronique monte à 1 eV alors que la température ionique n’augmente que d’une dizaine de K. Les températures électronique et ionique demanderont plusieurs dizaines de ps avant de s’égaliser.
- Le calcul suppose également qu’à chaque instant les électrons puissent être décrits par une distribution de Fermi Dirac. En d’autres mots, le système électronique doit être thermalisé pendant la transformation. Or, certains auteurs rapportent des temps d’équilibrations de l’ordre de la centaine de femtoseconde [52, 53] pour des expériences réalisées à très faible fluence ( $1 - 100 \mu\text{J/cm}^2$ ). À fluence plus élevée, quelques  $\text{J/cm}^2$ , les températures atteintes sont de quelques eV. Comme les collisions électron-électron évoluent en  $T_e^2$  et que les temps de collisions sont de l’ordre de la femtoseconde, nous

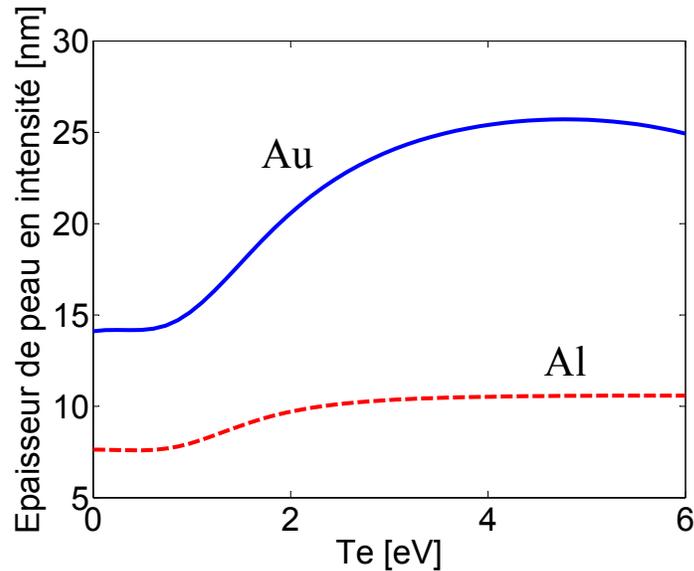


FIGURE 1.15 – Épaisseur de peau en intensité issue d'un modèle de Drude pour un onde à 800 nm de longueur d'onde en fonction de la température électronique.

nous attendons donc à des temps d'équilibrations beaucoup plus rapides. Donc, très rapidement après le dépôt laser, lors de la mesure expérimentale, le système est thermalisé et son état est défini par l'énergie absorbée  $\Delta E$ . L'énergie est une fonction d'état, l'énergie déposée dans le système ne dépend pas du chemin thermodynamique suivi. On peut considérer un chemin dans lequel le système est thermalisé à chaque instant. Le long de ce chemin, on peut calculer la température suivant la méthode proposée.

Pour le gaz d'électron libre avec  $C_{ve} = \gamma T_e$ , l'intégration se fait analytiquement pour obtenir

$$\Delta T_e = \sqrt{2 \frac{\Delta E}{\gamma}}, \quad (1.75)$$

De manière plus générale, l'intégration se fait numériquement grâce aux valeurs tabulées de capacité calorifique électronique [29]. Cette méthode prend en considération la DOS de chaque matériau, les effets de la bande  $d$  pour les métaux nobles sont donc pris en compte dans le calcul.

Le problème majeur consiste à estimer le volume dans lequel l'énergie est déposée afin de calculer la densité volumique d'énergie absorbée par la cible métallique. Pour cette raison, l'or ne présentant pas de transition interbande à  $\lambda = 800$  nm, nous estimons l'épaisseur de peau  $\delta^{(I)}$  en fonction de la température par un modèle de Drude en écrivant la fonction diélectrique sous la forme de l'équation (1.53) ou seuls les coefficients  $n_c$  et  $\nu_c$  sont variables.

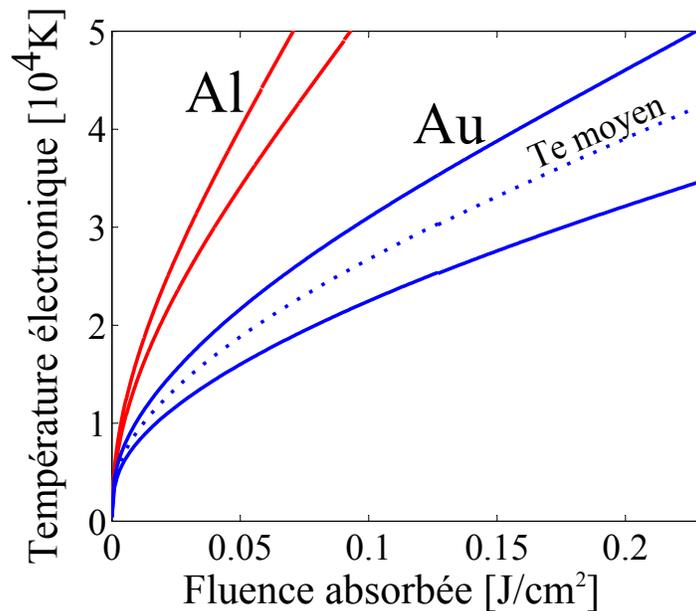


FIGURE 1.16 – Évolution de la température électronique en fonction de la fluence absorbée à 800 nm pour l'aluminium et l'or. Résultats obtenus par intégration de l'équation (1.71) en prenant en compte la DOS de chaque matériau.

Le même traitement est appliqué à l'aluminium sachant qu'une transition interbande existe à 800 nm [54], sa présence est visible sur le graphique 1.8. L'influence de cette transition est négligée dans cette approximation. Les évolutions de  $n_c$  et  $\nu_c$  en fonction de la température sont estimées par le calcul présent en figure 1.7 pour  $n_c$  pour l'or et via l'équation (1.63) pour  $\nu_c$ . Comme présentée en figure 1.15, pour des températures allant du solide froid à 6 eV, selon notre modèle, l'épaisseur de peau varie de 14 à 26 nm pour l'or et de 7.5 à 10 nm pour l'aluminium. Cette augmentation avec la température est principalement liée à l'augmentation de la fréquence de collision avec la température. Dans un milieu très collisionnel, les électrons ont moins de liberté et se déplacent plus difficilement. Leur réponse au champ électrique est amoindrie et l'onde se propage plus facilement. À la limite d'une fréquence de collision infinie, les électrons sont immobiles et ne répondent pas à l'excitation du champ. L'augmentation de la densité électronique pour l'or a, quant à elle, tendance à diminuer l'épaisseur de peau. Son influence est ici masquée par l'augmentation de la fréquence de collision.

Ainsi, l'épaisseur de peau pourrait évoluer d'un facteur pouvant aller jusqu'à 2 pour l'or durant le dépôt laser. Les deux valeurs seront considérées de manière à obtenir un encadrement de la température estimée. On estime ainsi la température par intégration de l'équation  $C_{ve}(T_e) = \partial E_e / \partial T_e$  pour obtenir l'évolution de la température en fonction de la fluence absorbée. Les résultats sont présentés en figure 1.16.

Pour étudier la WDM, on cherche à se placer dans des régimes de températures de quelques eV, les fluences absorbées doivent alors être de l'ordre  $0.1 \text{ J/cm}^2$  pour l'or et inférieures à  $0.1 \text{ J/cm}^2$  pour l'aluminium. Cela justifie des fluences laser incidentes autour de  $1 \text{ J/cm}^2$  en supposant une absorption d'une dizaine de pour-cent.



## Méthode expérimentale

Les expériences réalisées dans le cadre de cette thèse visent à caractériser les propriétés d'un corps excité par un laser optique ( $\lambda = 400$  ou  $800$  nm) à des fluences autour du  $\text{J}/\text{cm}^2$ . Alors que les temps de chauffage avoisinent les 30 fs, la matière est chauffée de manière très brève. Elle est portée dans un état hors équilibre que l'on se propose de sonder temporellement par le biais d'un second faisceau laser dit faisceau de sonde (expérience pompe-sonde). Ce deuxième faisceau étant issu du même oscillateur, la résolution temporelle est de l'ordre de 30 fs.

Pendant et après l'interaction, le corps chauffé voit ses propriétés diélectriques et hydrodynamiques modifiées. Afin de collecter des informations relatives à chaque propriété, on se propose de mesurer la phase et la réflectivité d'une onde sonde en réflexion sur le corps chauffé, la mesure étant effectuée simultanément dans les deux polarisations S et P. Nous verrons dans le chapitre suivant comment, depuis les mesures, séparer chaque contribution à la phase et à la réflectivité.

Pour réaliser ces mesures, nous utilisons une technique d'interférométrie dans le domaine des fréquences [21] nommée FDI (pour Frequency Domain Interferometer) qui permet des mesures de phase et de réflectivité ayant respectivement des résolutions de l'ordre de 10 mrad et de 1%. Nous nous intéressons en premier lieu au principe de fonctionnement du diagnostic FDI puis, nous décrirons la réalisation expérimentale. Elle a été étudiée dans le passé par plusieurs équipes et a fait l'objet de plusieurs thèses [55–58]. L'accent dans ce manuscrit est mis sur son optimisation. Voici en guise d'introduction quelques paramètres sur lesquels nous avons travaillé, nous y reviendrons par la suite plus en détail.

- Pour conserver des temps d'impulsion de 30 fs sur cible, les dispersions de vitesse de groupe introduites lors de la traversée d'optiques dans le montage sont compensées en

amont par le compresseur.

- Le système d'imagerie peut être composé d'une ou plusieurs lentilles. Un montage formé de plusieurs lentilles peut permettre de transporter l'image en faisceau parallèle afin que tous les rayons traversent les hublots en incidence normale mais un tel système augmente le risque d'aberration et peut en limiter l'ouverture.
- Pour augmenter la résolution spatiale, nous avons cherché à augmenter le nombre d'ouverture jusqu'à des valeurs de  $f/2$ . Les résultats nous ont montré que les aberrations étaient plus importantes sur les lentilles de petite focale et, malgré la grande ouverture, dégradait la résolution.
- Des mélanges entre les polarisations S et P peuvent intervenir si les réflexions sur les miroirs ne sont pas maîtrisées angulairement. De même, lors d'un passage au travers d'un hublot sous contrainte, un effet non linéaire mélange les polarisations. Une attention particulière a été prêtée aux problèmes de polarisations.
- Si les temps caractéristiques d'évolution des phases et de réflectivités sont plus courts que la durée de la sonde, des mélanges de fréquences apparaissent dans le spectre.

## 2.1 Principe de la mesure

### 2.1.1 Présentation générale de l'interférométrie dans le domaine des fréquences

L'utilisation du diagnostic FDI peut se faire de plusieurs manières différentes selon les résolutions souhaitées et les contraintes expérimentales, nous présentons ici le mode double impulsions en impulsion comprimée (cf schéma 2.1). Basé sur le principe pompe sonde, un faisceau laser intense (pompe) vient perturber la surface d'une cible en déposant son énergie. Objet de l'étude, la cible est sondée par un faisceau sonde de faible énergie. Le faisceau sonde est composé de deux impulsions identiques séparées d'un temps  $\Delta t$ . La première, en avance par rapport à l'autre, est appelée impulsion référence alors que la deuxième se nomme impulsion sonde. Comme présentée sur le schéma 2.2, en mode absolu la première impulsion de référence se réfléchit sur la cible en premier lieu. Ensuite, le faisceau pompe perturbe la cible et enfin, l'impulsion sonde se réfléchit à son tour. La perturbation introduite par la pompe modifie les propriétés en réflexion de la cible et l'impulsion sonde est modifiée en phase et en intensité par rapport à l'impulsion référence. Le principe de la mesure repose sur le fait que deux impulsions cohérentes séparées temporellement peuvent interférer dans un spectromètre. L'intensité dans le spectre et les franges d'interférences ainsi formées contiennent toute l'information correspondant au déphasage et à l'intensité relative du champ électrique d'une impulsion par rapport à l'autre.

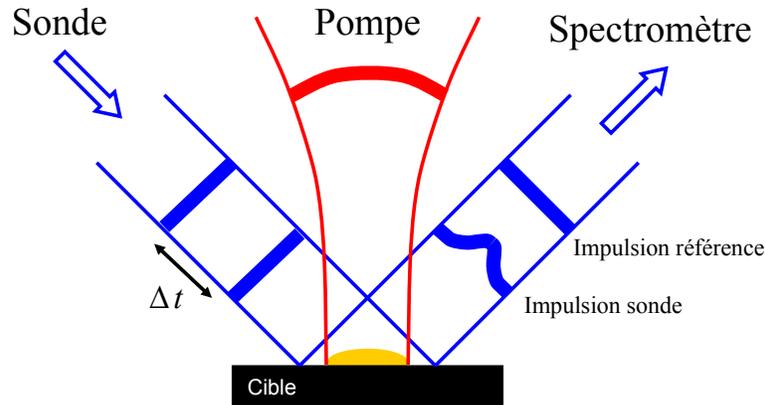


FIGURE 2.1 – Schéma de principe

Sachant que le temps  $\Delta t$  séparant les deux impulsions ne peut pas être aussi grand que parfois souhaité, afin d'aller sonder des temps plus longs, il est parfois nécessaire de travailler en mode relatif. Dans ce cas, les deux impulsions se réfléchissent sur la cible après la pompe et l'information recueillie est liée à la modification des propriétés de réflexion de la cible pendant le délai  $\Delta t$ , c'est à dire entre le passage des 2 impulsions référence et sonde.

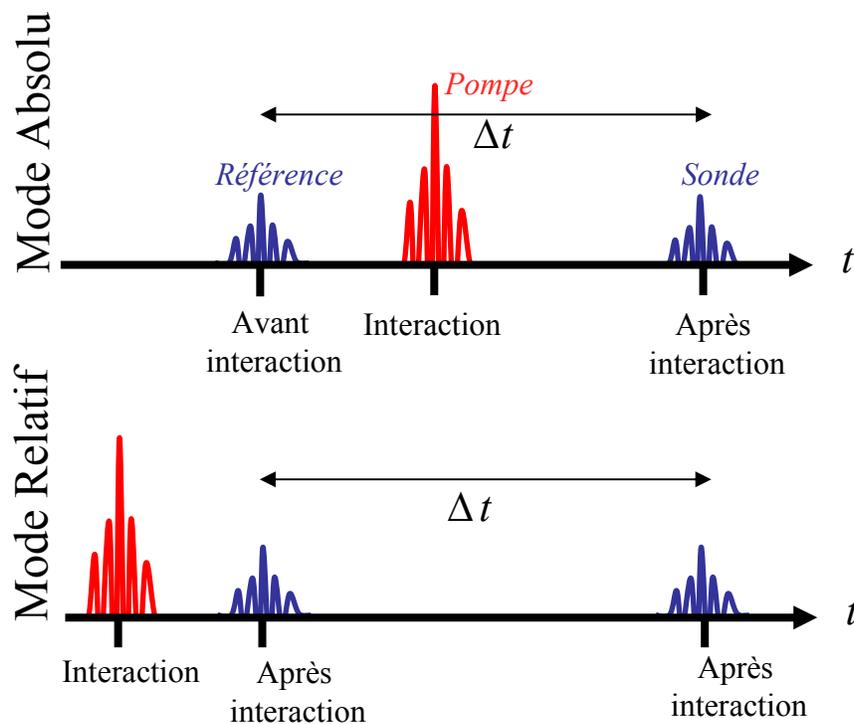


FIGURE 2.2 – Illustration des modes absolu et relatif

Si le diagnostic est bien réglé, les deux impulsions sondes parcourent exactement le même chemin optique. Cette particularité a pour avantage d'augmenter la résolution. Les défauts liés aux problèmes expérimentaux comme la poussière sur les miroirs et les problèmes de rugosité de la cible auront la même influence sur les deux impulsions. Comme la mesure se fait relativement d'une impulsion par rapport à l'autre, les défauts se compensent alors qu'ils s'ajouteraient si les chemins n'étaient pas les mêmes.

### 2.1.2 Calcul du déphasage et de la réflectivité

Nous utiliserons, pour définir la transformée de Fourier et son inverse, les conventions suivantes :

$$\begin{aligned}\tilde{A}(\omega) &= \mathbf{F}[A(t)] = \int_{-\infty}^{\infty} A(t)e^{-i\omega t} dt \\ A(t) &= \mathbf{F}^{-1}[\tilde{A}(\omega)] = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{A}(\omega)e^{i\omega t} d\omega\end{aligned}\tag{2.1}$$

d'où les relations

$$\begin{aligned}\mathbf{F}[A(t)e^{i\omega_0 t}] &= \tilde{A}(\omega - \omega_0) \\ \mathbf{F}[A(t - \Delta T)] &= e^{-i\omega\Delta T} \mathbf{F}[A(t)]\end{aligned}\tag{2.2}$$

Après réflexion sur la cible, le faisceau sonde est collecté par une lentille qui image la zone d'interaction de la cible sur la fente d'entrée d'un spectromètre, lui-même imageur. Il fait l'image de sa fente sur une caméra CCD. Le spectre obtenu en sortie est donc résolu spatialement.

#### Cas d'un tir de référence

On appelle tir de référence l'acquisition sur la caméra du spectre du faisceau sonde sans tir de pompe. Les deux impulsions identiques se réfléchissent sur la cible et passent par le même chemin optique. En un point de la fente, on écrit le champ électrique  $E_i = E_1 + E_2$  composé de la somme des deux impulsions séparées temporellement. Chaque impulsion est le produit d'une onde plane de pulsation  $\omega_0$  par une enveloppe gaussienne lentement variable  $E_0(t)$  qui confère à l'impulsion une largeur spectrale  $\Delta\omega$ . Sachant que chaque impulsion possède une phase absolue  $\phi_0$ , le champ à l'entrée de la fente s'écrit :

$$E_i(t) = E_0(t)e^{(i\omega_0 t + \phi_0)} + E_0(t - \Delta t)e^{(i\omega_0(t - \Delta t) + \phi_0)}\tag{2.3}$$

Le signal recueilli sur la caméra est l'intensité spectrale  $I(\omega)$  du signal électrique à l'entrée. Il se calcule comme le module au carré de la transformée de Fourier de la somme des champs

électriques incidents  $I(\omega) = |\mathbf{F}[E_i(t)]|^2$  pour obtenir :

$$I(\omega) = 2I_0(\omega) (1 + \cos(-\omega\Delta t)) \quad (2.4)$$

avec  $I_0(\omega) = |\mathbf{F}[E_0(t) e^{i\omega_0 t}]|^2 = |\tilde{E}_0(\omega - \omega_0)|^2$  le spectre gaussien centré sur  $\omega_0$ . Le spectre ainsi obtenu est cannelé, il est formé d'une gaussienne modulée par un cosinus. L'interfrange dépend du délai entre les 2 impulsions et vaut  $2\pi/\Delta t$ . Une réalisation expérimentale d'un tir de référence est montrée en figure 2.3.

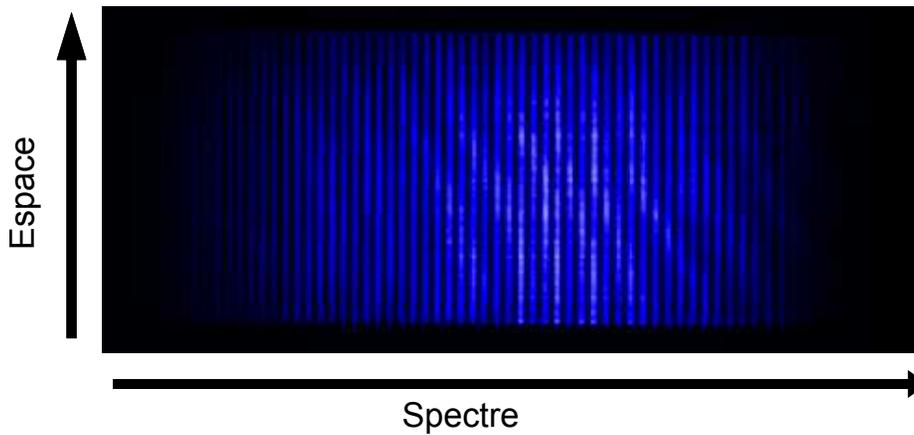


FIGURE 2.3 – Tir de référence expérimental.

### Cas d'un tir de pompe avec réflectivité constante pendant la durée de l'impulsion sonde

Lors d'un tir avec dépôt d'énergie sur la cible par la pompe, en mode absolu, la deuxième impulsion est modifiée en phase et en réflectivité par rapport à la première par réflexion sur la cible chauffée. On appelle  $R = re^{i\phi}$  le coefficient de réflexion à l'interface. Comme nous le verrons par la suite, il s'agit en réalité du coefficient de réflexion relatif de la deuxième impulsion par rapport à la première, il est supposé constant c'est à dire variant lentement devant le temps de l'impulsion sonde (30 fs). En écrivant la somme des champs  $E_i = E_1 + re^{i\phi}E_2$  sur la fente d'entrée puis en réalisant la transformée de Fourier, l'intensité sur la CCD en sortie de spectromètre devient :

$$I(\omega) = I_0(\omega) (1 + r^2 + 2r \cos(-\omega\Delta t + \phi)) \quad (2.5)$$

Le déphasage à l'interface  $\phi$  décalera la figure d'interférence spectralement alors que la modification de la réflectivité modifiera la valeur moyenne de l'intensité et changera le contraste

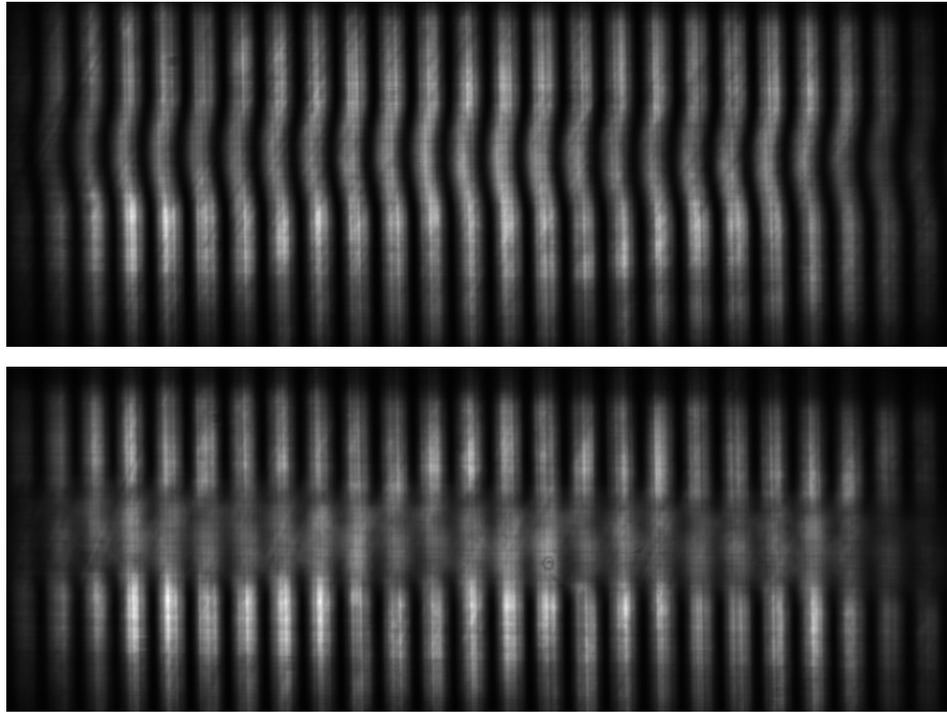


FIGURE 2.4 – Figures expérimentales issues d’un tir sur de l’or à  $7 \text{ J/cm}^2$ . En haut, polarisation S, la réflectivité est peu modifiée mais les franges sont décalées à cause du déphasage à l’interface. En bas, polarisation P, la deuxième impulsion est partiellement absorbée par le plasma en détente. Le contraste et l’intensité moyenne sont diminués dans la zone d’interaction. Ce tir constitue un cas école datant de 2009. À fluence modérée, les modifications de phase et réflectivité ne sont pas visibles à l’œil nu.

de la modulation. Notons que le coefficient de réflexion  $r$  apparait 2 fois dans l’équation, nous aurons à notre disposition 2 manières de le calculer depuis les figures expérimentales. Soit en filtrant le cosinus, soit en ne conservant que le terme en cosinus. La figure 2.4 montre à partir d’une image expérimentale le décalage de frange et la modification de la réflectivité.

L’objectif est ici de retrouver, à partir d’un spectre expérimental, les valeurs de  $r$  et  $\phi$ . Pour ce faire, une méthode consiste à utiliser 2 spectres : le spectre issu d’un tir couplé à un spectre de référence. Grâce aux formules d’Euler, le cosinus dans l’équation précédente se développe pour obtenir :

$$I(\omega) = I_0(\omega) (1 + r^2 + r[e^{i(-\omega\Delta t + \phi)} + e^{i(\omega\Delta t - \phi)}]) \quad (2.6)$$

On effectue alors une transformée de Fourier inverse pour passer dans le domaine temporel et obtenir :

$$\begin{aligned} \mathbf{F}^{-1}[I(\omega)] = \mathbf{F}^{-1}[I_0(\omega)] \otimes \{ & (1 + r^2) \mathbf{F}^{-1}[1] + \\ & r e^{i\phi} \mathbf{F}^{-1}[e^{i(-\omega\Delta t)}] + \\ & r e^{-i\phi} \mathbf{F}^{-1}[e^{i(\omega\Delta t)}] \} \end{aligned} \quad (2.7)$$

où  $\otimes$  représente le produit de convolution. Il s'agit alors d'une fonction sur  $t$  formée de 3 pics. La transformée de Fourier inverse  $\mathbf{F}^{-1}[1]$  donne un pic de Dirac centré sur 0 alors que  $\mathbf{F}^{-1}[e^{i(\omega\Delta t)}]$  et  $\mathbf{F}^{-1}[e^{i(-\omega\Delta t)}]$  donnent 2 pics centrés en  $\pm\Delta t$ .

Chaque pic est convolué par la fonction  $\mathbf{F}^{-1}[I_0(\omega)]$ , ce qui aura pour conséquence de les élargir. Si la sonde est gaussienne, alors cette fonction aura une largeur à mi-hauteur comparable à la durée de la sonde et, après convolution, les pics auront des largeurs à mi-hauteur comparables à la durée de la sonde. Donc, si  $\Delta t$  est largement plus grand que la durée de la sonde<sup>1</sup> alors il sera possible d'isoler un pic en effectuant un fenêtrage de  $\mathbf{F}^{-1}[I(\omega)]$  autour du pic à isoler. Cette nouvelle fonction fenêtrée s'écrit donc simplement :

$$\mathbf{F}^{-1}[I(\omega)] \cdot [\Pi_{\Delta t}] = \mathbf{F}^{-1}[I_0(\omega)] \otimes r e^{i\phi} \mathbf{F}^{-1}[e^{i(-\omega\Delta t)}] \quad (2.8)$$

où  $\Pi_{\Delta t}$  est une fonction fenêtre centrée sur  $\Delta t$ . On effectue de nouveau une transformée de Fourier, pour obtenir une fonction sur  $\omega$  que l'on nomme  $[I(\omega)]_{\cap}$ , où  $\cap$  symbolise le filtre passe bande. Il vient :

$$[I(\omega)]_{\cap} = I_0(\omega) e^{i(-\omega\Delta t)} r e^{i\phi} \quad (2.9)$$

Expérimentalement, on associe à chaque spectre  $I(\omega)$  issu d'un tir un spectre de référence<sup>2</sup>  $I_{ref}(\omega)$  pour lequel  $r e^{i\phi} = 1$ . Le même traitement que celui effectué sur un tir de pompe lui est appliqué afin d'obtenir l'expression suivante :

$$[I_{ref}(\omega)]_{\cap} = I_0(\omega) e^{i(-\omega\Delta t)} \quad (2.10)$$

On montre ainsi que

$$r e^{i\phi} = \frac{[I(\omega)]_{\cap}}{[I_{ref}(\omega)]_{\cap}} \quad (2.11)$$

Par commodité d'écriture, on appelle  $P(\omega) = [I(\omega)]_{\cap} / [I_{ref}(\omega)]_{\cap}$  le résultat de la division précédente. L'évaluation de cette fonction est nécessaire pour calculer le déphasage à l'interface  $\phi$ . Il s'obtient simplement en en prenant l'argument.

Concernant la réflectivité, elle peut s'obtenir de deux manières différentes :

---

1. En pratique, nous verrons par la suite que nous ne mesurons pas tout le spectre mais seulement une portion. Comparer la durée de la sonde à  $\Delta t$  n'est plus pertinent mais il faut comparer l'interfrange spectral à la largeur du spectre mesuré sur la caméra. En d'autres mots, il faudra simplement que le nombre de franges sur l'image soit suffisant pour que les pics soient séparables. Le programme de dépouillement des données permet de s'en assurer.

2. Plusieurs tirs successifs peuvent être associés à un même tir de référence si les conditions expérimentales sont inchangées ( $\Delta T$ , dispersion du réseau dans le spectromètre, etc). En pratique, prendre un tir de référence avant chaque tir laser améliore considérablement la qualité de la mesure en terme de niveau de bruit.

1. Soit en prenant le module de  $P(\omega)$ , d'où :

$$r = |P(\omega)|. \quad (2.12)$$

2. Soit en raisonnant sur l'intensité des spectres. Le fenêtrage n'est pas effectué sur l'un des pics latéraux mais sur le pic central. Cela revient à filtrer la modulation introduite par les interférences dans le domaine des fréquences afin de ne conserver que la composante continue, image de l'énergie dans le spectre. Il vient :

$$\mathbf{F}^{-1}[I(\omega)] \cdot [\Pi_0] = \mathbf{F}^{-1}[I_0(\omega)] \otimes (1 + r^2) \mathbf{F}^{-1}[1] \quad (2.13)$$

Ensuite, une transformée de Fourier est réalisée pour obtenir :

$$[I(\omega)]_{\hat{\cap}} = I_0(\omega) + r^2 I_0(\omega) \quad (2.14)$$

où  $\hat{\cap}$  symbolise le filtre passe bande autour de la fréquence nulle. Il s'agit naturellement de la somme spectrale des deux impulsions. Le premier possède une intensité  $I_0(\omega)$  alors que le deuxième s'est réfléchi sur une cible de réflectivité  $r$  et possède dorénavant une intensité  $r^2 I_0(\omega)$ . Le même traitement est réalisé sur un spectre de référence, on note  $[I_{ref}(\omega)]_{\hat{\cap}} = I_0(\omega) + I_0(\omega)$  le résultat après filtrage. On appelle  $R_{\dot{\cap}}$  le résultat de la division du tir par la référence. La réflectivité devient alors :

$$r = \sqrt{2R_{\dot{\cap}} - 1}. \quad (2.15)$$

Nous appellerons la première méthode "calcul de réflectivité sur la modulation" et la deuxième "calcul de réflectivité sur l'intensité". Bien que moins intuitive car basée sur la modulation et non sur l'énergie, la première méthode possède un avantage certain. Si les deux impulsions de sonde ne sont pas parfaitement identiques en terme d'intensité (un désalignement du Michelson ou sa lame séparatrice qui n'est pas exactement 50/50) alors le résultat donné par la méthode basée sur l'intensité sera erroné alors que celui donné par la méthode basée sur la modulation sera juste (cf §2.4.1). La différence entre les deux impulsions se compensera lors de la division du tir par la référence.

Notons que, si effectivement la réflectivité  $re^{i\phi}$  est constante durant le passage de l'impulsion sonde, alors  $P(\omega)$  sera constant sur tout le spectre. L'information est redondante et moyennner  $P(\omega)$  sur tout le spectre mesuré améliore considérablement le rapport signal sur bruit. Si, en revanche, la réflectivité évolue durant le temps de passage de l'impulsion sonde,  $P(\omega)$  ne sera plus constant sur tout le spectre et une précaution doit être prise pour que le signal mesuré ait un sens physique. Cette partie est traitée lors de la discussion sur la résolution temporelle au paragraphe 2.4.6.

## 2.2 Montage expérimental en mode double impulsion

### 2.2.1 Description générale

Un schéma du montage est montré sur la figure 2.5. Le faisceau en entrée est d'abord divisé en deux voies par une lame séparatrice 80/20. Ensuite, chaque voie possède son propre système de réglage d'énergie composé d'une lame  $\lambda/2$  suivie d'une cube séparateur de polarisation (non représentés sur le schéma). La lame tourne la polarisation du faisceau et le polariseur transmet la projection de l'onde incidente suivant son axe. L'intensité suit alors la loi de Malus. Notons qu'en sortie de chaîne Aurore subsiste une faible composante perpendiculaire à la polarisation principale dont les caractéristiques ne sont pas assurées en terme de durée d'impulsion. Utiliser le système décrit précédemment pour réduire franchement l'énergie revient à maximiser cette composante. Pour baisser franchement l'énergie - typiquement en dessous de 10% de l'énergie maximum - sans dégrader les caractéristiques du laser, il est préférable d'utiliser un autre moyen comme une lame séparatrice ou une lame prismatique.

Voici un bref descriptif du montage, chaque étape est reprise plus précisément dans la suite. Il est formé de deux voies, une voie sonde et une voie pompe :

- **Voie sonde** : Le faisceau est comprimé puis passe au travers d'un interféromètre de Michelson. L'impulsion est dupliquée en deux impulsions identiques séparées temporellement. Le faisceau entre dans l'enceinte sous vide et est diaphragmé. Il passe éventuellement au travers d'un cristal doubleur avant d'être focalisé sur la cible sur une surface supérieure à la zone chauffée par la pompe avec un angle d'incidence de  $45^\circ$ . Après réflexion sur la cible, il passe alors au travers d'une lentille de reprise qui image le plan de la cible sur la fente d'entrée d'un spectromètre imageur. En sortie, juste devant le détecteur (caméra 16 bit), le spectre passe au travers d'un prisme de Wollaston qui sépare spatialement les 2 polarisations S et P.
- **Voie pompe** : Le faisceau est également comprimé et passe par une ligne à retard. Elle permet de varier le délai entre les impulsions sonde et pompe. Une partie de l'énergie est prélevée pour être mesurée sur une photo-diode. Le faisceau entre dans l'enceinte sous vide, est diaphragmé, éventuellement doublé en fréquence puis focalisé sur la cible avec un angle d'incidence de  $5^\circ$  par rapport à la normale. La réflexion après cible est transportée en dehors de l'enceinte pour être mesurée sur une deuxième photo-diode. Cette mesure permet de connaître la quantité d'énergie déposée dans la cible.

Le laser est cadencé à 1 kHz. Il est donc plus stable en énergie et en pointé qu'un laser ne délivrant que quelques impulsions par jour. En mode double impulsion avec impulsions com-

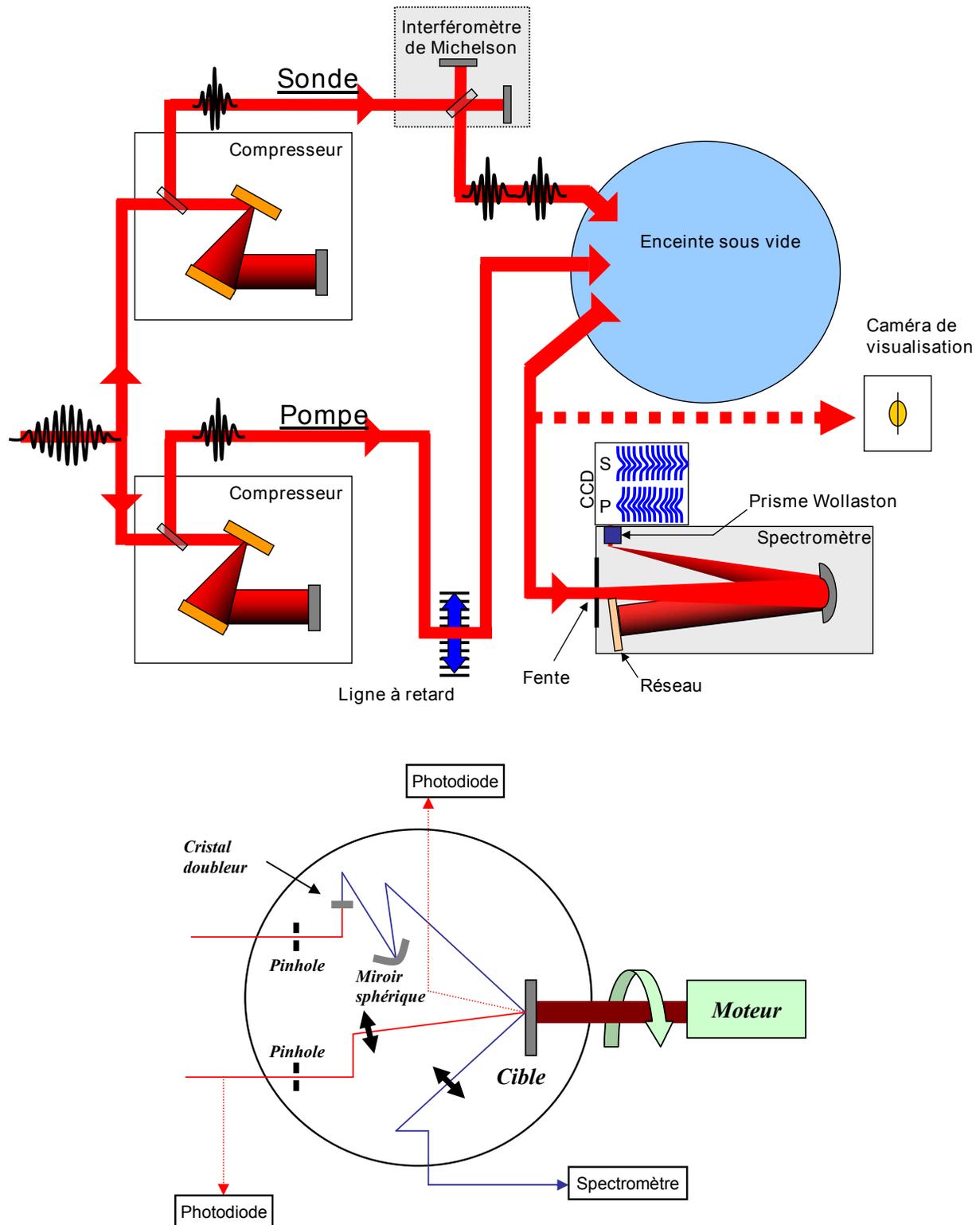


FIGURE 2.5 – Schéma du set-up expérimental représenté ici dans le cas d'une pompe à 800 nm et d'une sonde à 400 nm. Les miroirs plan n'ont pas été représentés. Angles d'incidences sur cible : Pompe 5° - Sonde 45°, lentille de focalisation pompe  $f = 200$  mm, miroir sphérique sonde  $f = 500$  mm. Lentille de reprise sonde (doublet achromatique)  $f = 200$  mm –  $\phi = 50$  mm.

primées, l'évolution temporelle de la réflectivité n'est pas obtenue en 1 seul tir mais demande une acquisition différente pour chaque temps de mesure. Le laser se doit de fournir la même énergie à chaque tir.

Lors d'une acquisition, on accumule sur la caméra CCD l'ensemble des impulsions sondes comprises dans un laps de temps (temps de pause) variant de 100 ms à 1 s donc entre 100 et 1000 interactions identiques sont sommées. En accumulant plusieurs interactions indépendantes, on dispose pour chaque acquisition d'une quantité de signal totale suffisante sur la camera tout en se permettant pour chaque interaction un niveau de signal très faible. Ainsi, il est possible d'utiliser des caractéristiques du set-up qui améliorent la qualité au dépend de la quantité de signal comme :

- Une fente de spectromètre très fine ( $25 \mu\text{m}$ ) : Amélioration de la résolution spectrale.
- Ne pas mesurer tout le spectre mais seulement une portion : Réduction des défauts d'achromatisme de la lentille d'imagerie et augmentation du délai  $\Delta t$  entre les deux impulsions.
- Limiter le flux de la sonde sur cible. De cette manière, elle perturbe moins le système excité par la pompe. De plus, elle est moins sujette à aux effets non-linéaires (intégrale B) dans la lentille d'imagerie.

Notons également que chaque interaction indépendante est sujette aux défauts locaux (ponctuels) de la cible donc en faire la somme revient à moyenner les défauts.

En revanche, accumuler plusieurs interactions à chaque acquisition possède un désavantage majeur : le matériau chauffé doit être rafraîchi entre chaque interaction. Pour ce faire, les cibles sont des disques de 10 cm de diamètre montés sur un porte cible rotatif stabilisé.

### 2.2.2 Porte cible stabilisé

Ce porte cible est développé sur le modèle du porte cible de la salle noire du LOA. Il est constitué d'un moteur positionné à l'extérieur de l'enceinte qui met en rotation un axe. Positionnée au bout de cet axe, la cible est en rotation durant les acquisitions. Elle tourne au maximum à une vitesse de 1 tour par seconde. Le délai entre la pompe et la sonde est au maximum de quelques ps donc la cible est considérée comme immobile pendant la durée de l'interaction. En revanche, 1ms sépare 2 interactions, temps durant lequel la cible peut se déplacer et, si la vitesse de rotation est suffisante, la pompe voit une cible nouvelle à chaque interaction. Sur une acquisition, l'ensemble des cratères issus des interactions successives se

placent sur un cercle. Avant de passer à l'acquisition suivante, il est nécessaire de déplacer le cercle. Pour ce faire, le porte cible est monté sur une platine de translation permettant des déplacements micrométriques. Au plus les interactions se situent au centre de la cible, au plus la vitesse de rotation doit être élevée pour ne pas que les cratères ne se recouvrent.

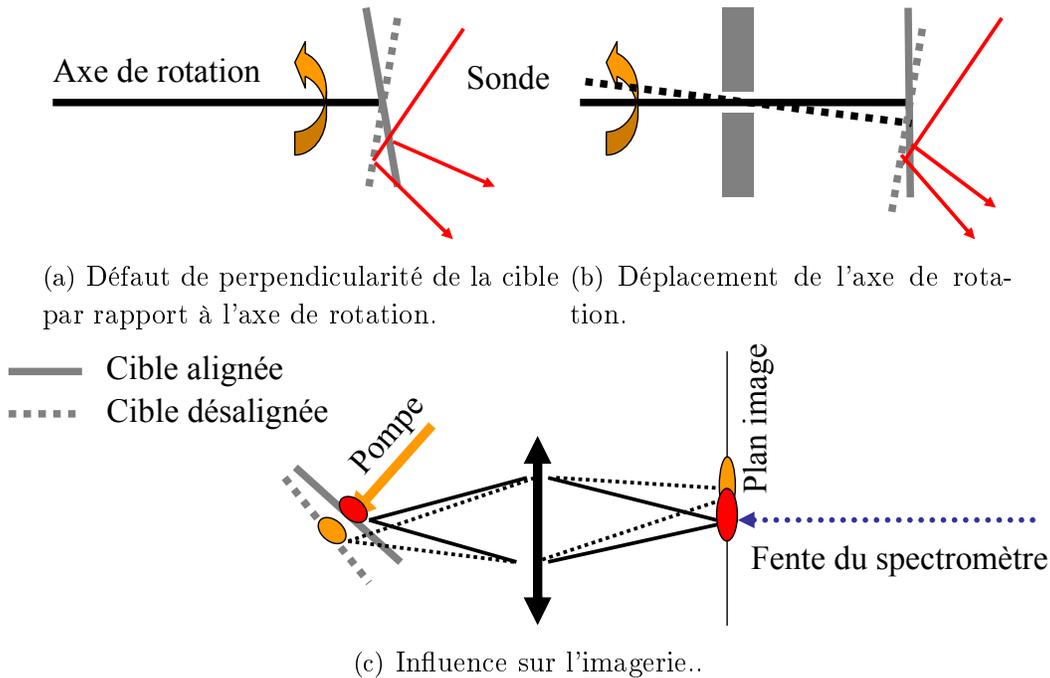


FIGURE 2.6 – Désalignement de la sonde suite à des défauts lors de la rotation de la cible.

Ce porte cible est conçu de manière à minimiser les défauts d'angle qui se manifestent lors de la rotation. Comme présenté sur la figure 2.6, si la cible n'est pas parfaitement perpendiculaire à l'axe de rotation, comme pompe et sonde ne se réfléchissent pas au centre de la cible mais entre le bord et le centre, lors de la rotation, l'assiette de la cible évolue et les lasers se réfléchissent sur une surface en mouvement. D'une part, l'angle d'incidence évolue et d'autre part, la position spatiale du point de réflexion évolue également. Il se déplace dans la profondeur. Sachant que l'imagerie de la zone chauffée est à  $45^\circ$  d'incidence, un déplacement dans la profondeur se traduit par un déplacement latéral de la zone chauffée dans le plan image (fig. 2.6(c)). Cette zone chauffée se déplace par rapport à la fente du spectromètre (immobile) et le FDI ne sonde plus le centre de la zone chauffée mais les bords. Plusieurs précautions doivent être prises pour minimiser ces faibles déplacements :

- La cible doit être montée parfaitement perpendiculairement à l'axe de rotation (fig. 2.6(a)). Pour cette raison, 3 pico-moteurs servent à modifier angulairement la cible (voir figure 2.7). Ils permettent également une translation de la cible dans le sens de

la profondeur. Lors d'un changement de cible, la surface de la nouvelle cible doit être positionnée à l'identique de l'ancienne sinon la cible n'est plus dans l'axe optique de l'imagerie et des effets sur la qualité de l'imagerie apparaissent (astigmatisme). On agit sur les 3 pico-moteurs en même temps pour mener à bien cet exercice.

- Lors de la rotation, l'axe de rotation doit être maintenu fermement pour éviter que cet axe ne se déplace (fig. 2.6(b)). Il est maintenu par un roulement à billes serré.
- Entre 2 acquisitions, la cible doit être translatée pour être rafraîchie. Lors de la translation, la longueur de l'axe évolue (fig. 2.7). Pour cette raison, l'axe possède un degré de liberté en translation. Bien que cette translation existe, une contrainte subsiste au sein de l'axe après la translation et la cible se déplace dans la profondeur. Pour cette raison, nous avons ajouté un tombac sur l'axe qui absorbe cette contrainte. Notons que pour des raisons d'angle évidentes, 2 cardans sont présents sur l'axe.

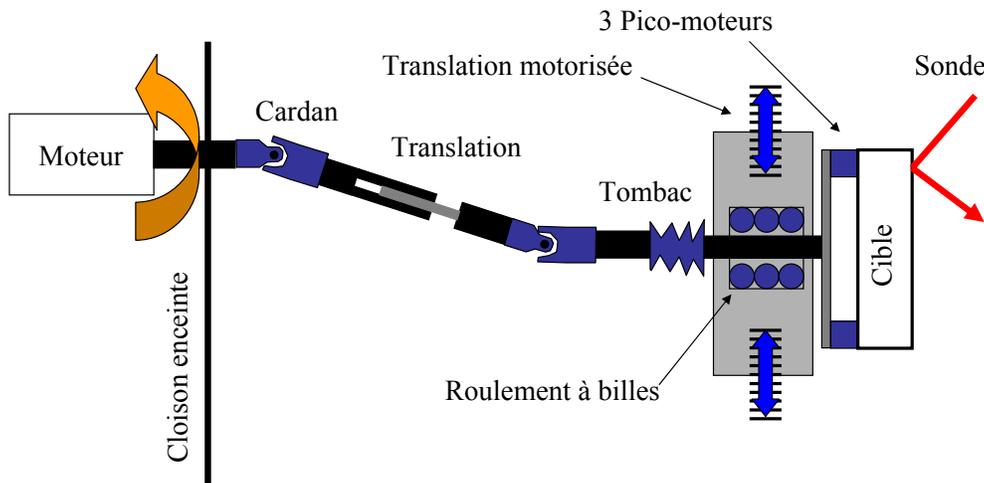


FIGURE 2.7 – Schéma vu de dessus du porte cible stabilisé.

En pratique, suite à ces considérations, lors de la rotation, la zone chauffée se déplace latéralement par rapport à la fente du spectromètre ramené au plan de la cible sur une distance  $< 5 \mu\text{m}$ . Nous verrons par la suite que les tailles de taches focales de la pompe sont de l'ordre de  $50 \mu\text{m}$  donc ces déplacements sont suffisamment maîtrisés pour ne pas poser de problème.

## 2.3 Caractéristiques laser

### 2.3.1 La chaîne Aurore du CELIA

La majorité des résultats a été obtenue sur la chaîne Aurore du CELIA basée sur le principe de l'amplification à dérive de fréquence. Une faisceau de faible énergie (1.5 nJ) est issu d'un oscillateur formé par un cristal de Saphir dopé au Titane pompé par un laser continu

à 532 nm. D'une durée d'impulsion de 15 fs cadencé à 80 MHz, le faisceau est ensuite étiré temporellement par réflexions multiples sur des réseaux. Sa largeur spectrale demeure inchangée mais sa phase spectrale est modifiée, les différentes composantes fréquentielles sont séparées temporellement. Étirée à environ 400 ps, l'intensité crête est réduite donc le faisceau peut maintenant être amplifié sans atteindre le régime d'endommagement des amplificateurs et éviter les effets non-linéaires. Une cellule de Pockels sélectionne une impulsion sur 80 000 pour réduire la fréquence à 1 kHz avant d'entrer dans une cavité régénérative composée également d'un cristal de Titane-Saphir pompé par un laser cadencé à 1 kHz. Piloté par un jeu de cellule de Pockels, l'impulsion y effectue 10 allers-retours avant d'entrer dans l'amplificateur multi-passage cryogéné. A ce stade, les impulsions contiennent 1.5 mJ. Chaque impulsion effectue grâce à jeu de miroirs 4 passages au travers d'un même cristal pour arriver à une énergie de  $\simeq 20$  mJ.

En sortie de chaîne, les impulsions lasers sont caractérisées par les paramètres suivants :

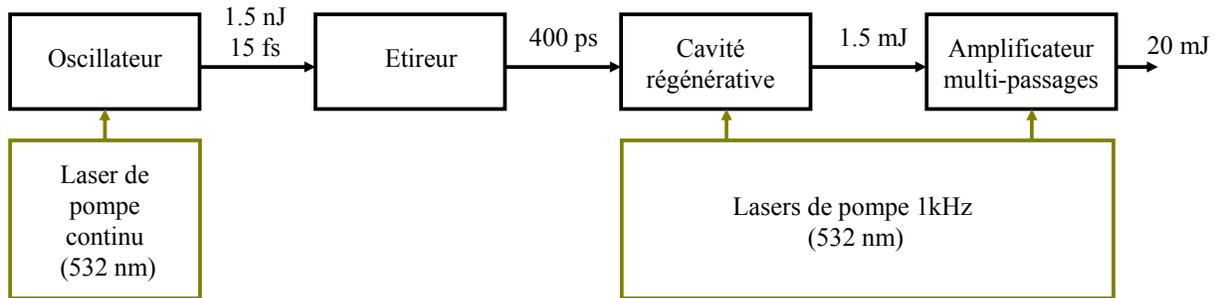


FIGURE 2.8 – Schéma de fonctionnement de la chaîne Aurore

- Énergie  $\simeq 20$  mJ
- Durée étirée  $\simeq 400$  ps
- Durée comprimée : 25 fs
- Taux de répétition = 1 kHz
- Largeur spectrale  $\Delta\lambda = 50$  nm FWHM
- Longueur d'onde centrale  $\lambda_0 = 802$  nm
- Polarisation linéaire

Le faisceau est ensuite transporté et distribué dans 2 salles d'expériences, chacune disposant de 10 mJ.

### 2.3.2 Mesure du contraste temporel

Le contraste est un paramètre important dans l'étude de l'interaction du laser avec un solide. L'énergie déposée avant le pic principal peut être responsable de la formation d'un

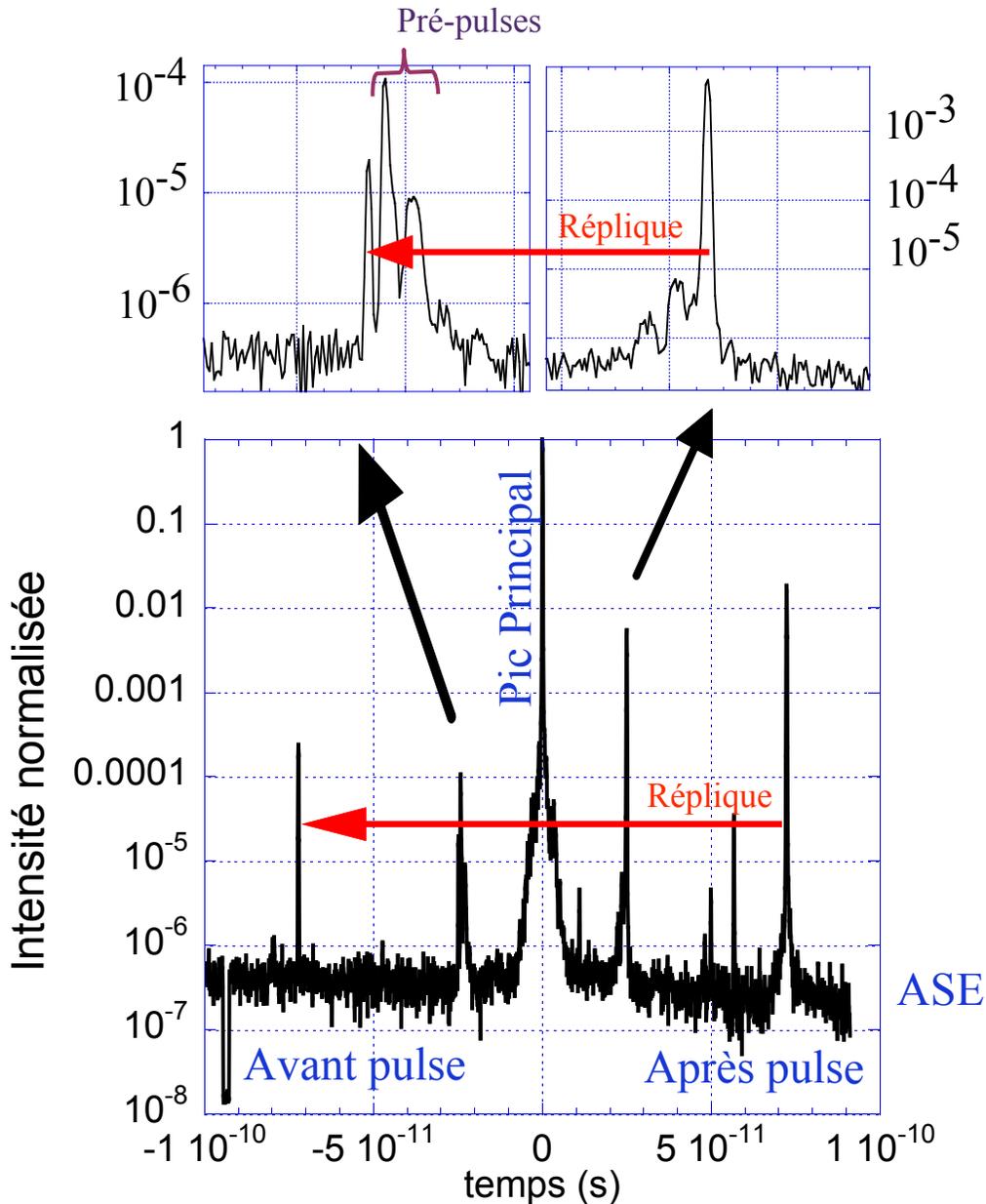


FIGURE 2.9 – Contraste de l’impulsion laser mesuré lors de la campagne expérimentale de Juin 2012. Le seuil de détection est de  $10^{-8}$ .

pré-plasma ou d’un gaz en détente. Si ce gaz en détente s’ionise, le processus de dépôt d’énergie est modifié et la pompe dépose moins d’énergie dans la matière solide. Le critère qui sera défini dans la suite (§3.2) nous assure que le dépôt se fait de manière isochoire mais la question reste ouverte si celui-ci n’est pas satisfait. Nous avons mesuré le contraste à l’aide d’un autocorrélateur  $3\omega$  ‘SEQUOIA’ développé par la société Amplitude Technologie. Le résultat est présenté en figure 2.9.

En dehors du pic principal, on constate la présence de 4 impulsions. Dans un autocor-

rélateur à  $3\omega$ , l'impulsion laser incidente est dupliquée en 2 impulsions. L'une des deux est doublée en fréquence et l'autre passe par une ligne à retard. Ensuite, les 2 impulsions passent au travers d'un deuxième cristal pour générer une harmonique d'ordre 3. Le signal est mesuré en sortie sur un photo-multiplicateur en fonction du délai d'une impulsion par rapport à l'autre. Si une pré-impulsion est présente avant l'impulsion, sa présence donnera lieu à 2 pics. Un pic est issu de la somme dans le cristal tripleur de la pré-impulsion doublée à  $2\omega$  avec l'impulsion principale à  $\omega$  et 1 autre pic est issu de la somme de la pré-impulsion à  $\omega$  avec l'impulsion principale à  $2\omega$ . La somme issue de la pré-impulsion avec elle-même est comprise dans le pic principal de la figure 2.9. Ces deux pics sont placés de part et d'autre du pic principal. On distinguera le pic d'intérêt de sa réplique en notant que la réplique est le carré du pic d'intérêt.

Parmi les 4 pics, après avoir distingué les pics de leurs répliques, seules deux parties de la sous-structure d'un pic font référence à 2 pré-impulsions. Le plus intense d'entre eux, à  $t = -24$  ps, est d'un niveau très faible ( $10^{-4}I_0$ ). Il est sans effet sur la mesure. Par ailleurs, l'ASE (Amplified Spontaneous Emission) dure environ 3 ns à une intensité de  $3 \cdot 10^{-7} I_0$ , ce qui correspond à 3% de l'énergie totale. Des simulations faites par le code de simulation ESTHER [47,59] (voir Annexe A) dont nous reparlerons nous ont montré que l'énergie déposée par l'ASE est sans influence sur nos mesures.

### 2.3.3 Compression des faisceaux et dispersion de vitesse de groupe à travers les optiques

La compression des faisceaux consiste à compenser la dispersion introduite par l'étireur présent avant l'amplification en salle laser. L'installation des réseaux nécessaires à la compression est une opération délicate. Un léger désalignement peut augmenter les durées d'impulsions de manière dramatique. Une fois installée, on contrôle la dispersion, donc les durées temporelles, en agissant sur l'écart entre les deux réseaux (voir figure 2.10). Les durées sont mesurées avec un autocorrélateur à  $2\omega$ , l'optimum en translation correspond naturellement aux durées des faisceaux comprimés au mieux soit 25 fs. Les deux faisceaux sont comprimés indépendamment, cela permet par exemple de travailler en impulsion étirée sur la sonde tout en conservant une pompe comprimée. Cela permet également, comme nous allons le voir ensuite, de compenser la dispersion de vitesse de groupe introduite lors de la traversée des optiques du montage sur les 2 voies séparément.

Les faisceaux comprimés vont traverser diverses optiques avant de se trouver focalisés sur la cible (hublots etc.). Dans un milieu dispersif, l'indice optique dépend de la longueur d'onde donc la vitesse de groupe n'est pas la même pour chaque composante spectrale (dispersion de vitesse de groupe). Elles sont retardées les unes par rapport aux autres et l'impulsion

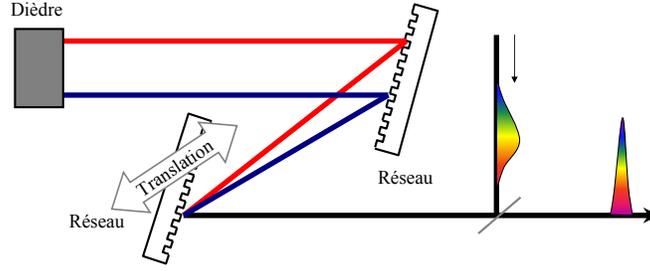


FIGURE 2.10 – Schéma de fonctionnement d'un compresseur. L'écart entre les 2 réseaux fait varier la dispersion.

s'allonge temporellement. L'évolution du champ électrique lors de sa propagation suivant l'axe  $z$  s'écrit simplement dans l'espace des fréquences :

$$\tilde{E}(z, \omega) = \tilde{E}(0, \omega)e^{-ik(\omega)z}, \quad (2.16)$$

où  $k$  est le vecteur d'onde,  $\tilde{E}(0, \omega) = \sqrt{\pi}\tau_0 \exp[-(\tau_0(\omega - \omega_0)/2)^2]$  est l'amplitude gaussienne du champ électrique comprimé au mieux dans le domaine des fréquences,  $\omega_0$  la pulsation centrale et  $\tau_0$  la demi-largeur temporelle en amplitude et en  $1/e$ . Nous pouvons effectuer un développement limité du vecteur d'onde autour de la pulsation centrale  $\omega_0$  pour obtenir :

$$k(\omega) = k(\omega_0) + \left(\frac{\partial k}{\partial \omega}\right)_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2}\right)_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + \dots \quad (2.17)$$

avec  $\partial k/\partial \omega = 1/v_G$  où  $v_G$  est la vitesse de groupe et  $k''_{\omega_0} = \partial^2 k/\partial \omega^2$  la dispersion de vitesse de groupe (GVD pour Group Velocity Dispersion). Par transformée de Fourier inverse du champ électrique écrit dans le domaine des fréquences, on obtient l'expression du champ électrique dans le domaine temporel. Il s'agit d'une onde plane dont l'amplitude est modulée par une fonction enveloppe. On montre que la demi-largeur en  $1/e$  du profil temporel de l'enveloppe en amplitude s'écrit :

$$\tau_f(z) = \tau_0 \left[ 1 + \left( \frac{2k''_{\omega_0} z}{\tau_0^2} \right)^2 \right]^{1/2}. \quad (2.18)$$

Si la GVD du milieu traversé n'est pas nulle, la durée de l'impulsion est donc modifiée au cours de sa propagation, elle croît avec  $z$ . On trouve sur le site de Newport les valeurs des dispersions de vitesse de groupe de différents matériaux, le tableau 2.11 en présente un extrait.

On remarque que les valeurs sont nettement plus élevées à 400 nm qu'à 800 nm. C'est la raison pour laquelle nous utiliserons majoritairement des miroirs sphériques - et non des lentilles

$\lambda_0$	Silice fondue	LakL21	SF10	BK7
400	97.43	165.6	672.9	122.4
800	36.11	59.46	159.2	50.6

FIGURE 2.11 – Dispersion de vitesse de groupe de divers matériaux optiques en  $\text{fs}^2.\text{mm}^{-1}$ .

- pour focaliser les faisceaux quand ceux-ci sont doublés en fréquence. D'autre part, si les faisceaux sont doublés en fréquence, alors le doublage est effectué sous vide après la traversé des hublots.

Si la dispersion introduite par les optiques traversées n'est que du deuxième ordre, il est alors possible de les pré-compenser en amont par les compresseurs. Apparaît ici un intérêt supplémentaire d'une compression des faisceaux sonde et pompe indépendante. En effet, il ne traversent pas les mêmes optiques donc ne demandent pas la même compensation. Dans notre cas, les optiques traversés sont :

- Hublots en sortie de compresseur et en entrée d'enceinte pour la pompe et la sonde,
- Lentille de focalisation pour la pompe,
- Lames séparatrice et compensatrice dans un Michelson pour la sonde.

Sachant qu'il est généralement difficile de faire une mesure d'auto-corrélation à  $2\omega$  dans l'enceinte, il est habile d'utiliser un cristal doubleur et d'en mesurer le flux sortant par une photo-diode muni d'un filtre coupant le 800 nm. Les cristaux sont non linéaires : l'intensité du signal doublé en fréquence, en régime non saturé, est proportionnelle au carré de l'intensité incidente. En jouant sur la durée temporelle du faisceau initial, on modifie alors l'intensité crête et le taux de conversion est au maximum quand l'impulsion est comprimée au mieux au niveau du cristal. Pour une bonne compression dans l'enceinte, le compresseur doit être ajusté d'une centaine de  $\mu\text{m}$  par rapport au réglage optimum juste après le compresseur. Sans compensation, les durées d'impulsions seraient de  $\simeq 50$  fs sur cible.

## 2.4 Voie sonde

### 2.4.1 Réglage de l'interféromètre de Michelson

L'interféromètre de Michelson a pour but de créer deux répliques identiques séparées temporellement à partir d'une impulsion unique. Il est d'abord réglé en teinte plate puis l'un des deux miroirs est translaté par rapport à l'autre d'une certaine distance fixant ainsi le délai  $\Delta t$  entre les deux impulsions, les délais pouvant aller jusqu'à une vingtaine de picosecondes.

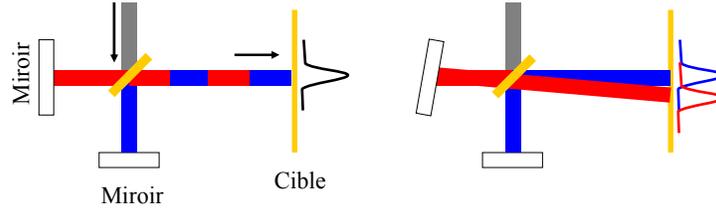
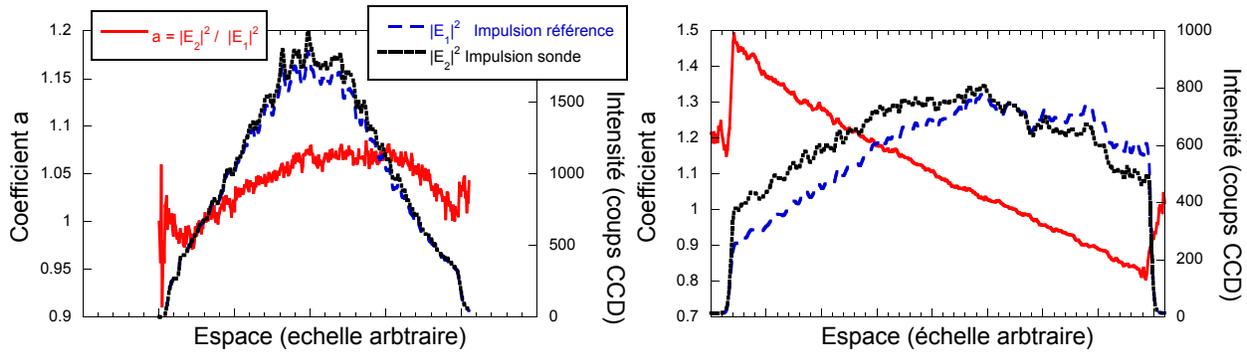


FIGURE 2.12 – Schéma d'un interféromètre de Michelson aligné (gauche) et désaligné (droite).

La difficulté majeure réside dans le fait d'obtenir 2 impulsions parfaitement superposées spatialement sur la cible. Au paragraphe 2.1.2, nous avons supposé que la somme des champs à l'entrée du spectromètre était de la forme  $E_i = E_1 + r e^{i\phi} E_2$  avec  $|E_1| = |E_2|$ . Si le Michelson n'est pas correctement aligné, les deux sondes ne se superposent pas parfaitement sur la cible et nous sommes contraints de prendre en compte  $|E_2| \neq |E_1|$ . On introduit alors un paramètre supplémentaire  $a$  tel que  $|E_2|^2/|E_1|^2 = a$ . Pour le mesurer, sans tir de pompe, on bloque successivement un bras du Michelson puis l'autre. Ensuite on divise les images pour obtenir  $a$ . Expérimentalement, il est très difficile d'obtenir un résultat meilleur que celui présenté sur le graphique de la figure 2.13 de gauche.

FIGURE 2.13 – Calcul de  $a = |E_2|^2/|E_1|^2$  à partir d'images expérimentales.

On se propose de corriger l'équation (2.15) lorsque le paramètre  $a$  est introduit. Sur la fente d'entrée du spectromètre, le champ électrique s'écrit  $E_i = E_1 + \sqrt{a} r e^{i\phi} E_1$ . Le paramètre  $a$  est ici portée sur la deuxième impulsion et l'intensité sur la CCD en sortie de spectromètre devient :

$$I(\omega) = I_0(\omega) (1 + a r^2 + 2\sqrt{a} r \cos(-\omega\Delta t + \phi)) \quad (2.19)$$

En isolant le pic central après transformée de Fourier inverse puis en faisant de nouveau une transformée de Fourier, suivant les notations utilisées au paragraphe 2.1.2, on obtient :

$$\begin{cases} [I(\omega)]_{\hat{\gamma}} &= I_0(\omega) + a r^2 I_0(\omega) \\ [I_{ref}(\omega)]_{\hat{\gamma}} &= I_0(\omega) + a I_0(\omega) \end{cases} \quad (2.20)$$

d'où

$$r = \sqrt{\frac{(1+a)R_{\dot{z}} - 1}{a}}. \quad (2.21)$$

On montre ici qu'un désalignement du Michelson va avoir des conséquences sur le calcul de la réflectivité. Sur les graphiques de la figure 2.14 sont présentés la réflectivité que l'on mesurerait si le Michelson était désaligné et l'erreur introduite lorsque  $a$  n'est pas pris en compte dans le calcul de la réflectivité. Le problème se pose en particulier pour les réflectivités inférieures à 1 où l'erreur dépasse rapidement les 20%.

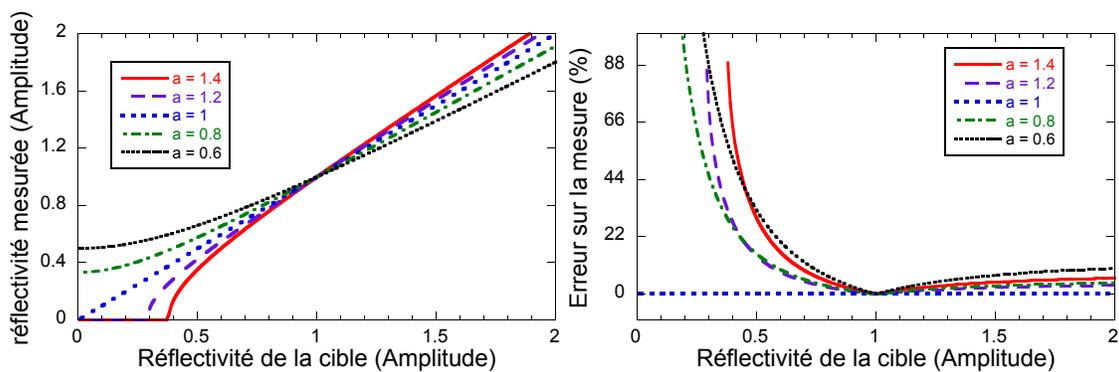


FIGURE 2.14 – Calcul de l'erreur introduite par un Michelson mal aligné.

Heureusement, calculer la réflectivité sur la modulation et non sur l'intensité permet de s'affranchir de cette contrainte. En effet, reprenant l'équation (2.19) mais en isolant cette fois ci un pic latéral, on obtient :

$$\begin{cases} [I(\omega)]_{\cap} &= I_0(\omega) e^{i(-\omega\Delta t)} \sqrt{a} r e^{i\phi}, \\ [I_{ref}(\omega)]_{\cap} &= I_0(\omega) e^{i(-\omega\Delta t)} \sqrt{a}. \end{cases} \quad (2.22)$$

d'où, en divisant le tir par le tir de référence, après simplification le coefficient  $a$  disparaît pour obtenir :

$$P(\omega) = r e^{i\phi}, \quad \forall a \quad (2.23)$$

où la réflectivité s'obtient en prenant le module de  $P(\omega)$ . On montre ainsi que la méthode de calcul de réflectivité basée sur la modulation est plus robuste que celle basée sur l'intensité. Un désalignement du Michelson est sans influence sur la mesure.

À titre indicatif, est tracée sur le graphique de la figure 2.15 la réflectivité calculée par les 2 méthodes à partir d'un même tir expérimental lorsque le Michelson n'est pas parfaitement aligné. La réflectivité calculée sur l'intensité (lorsque le paramètre  $a$  n'est pas pris en compte) montre une dissymétrie dont le désalignement du Michelson est responsable. Lorsque la réflectivité est calculée sur la modulation, la dissymétrie est absente. La réflectivité montre un

forme symétrique, en accord avec la symétrie spatiale de la tache focale de la pompe.

Cette méthode possède un second avantage certain. Si pompe et sonde sont à la même longueur d'onde, à haute énergie de pompe, du signal diffusé par la pompe vient perturber le spectre de la sonde. Pompe et sonde interfèrent pour donner lieu à des franges spectrales. Lorsque l'on accumule une centaine de tirs sur la même acquisition, la phase absolue de la pompe n'est pas constante - par rapport à celle de la sonde - d'un tir à l'autre donc les franges provoquées par un tir seront déphasées par rapport au tir suivant. Statistiquement, si le nombre de tirs accumulés est suffisant (typiquement une centaine), les franges s'annulent, donnant lieu à une composante continue. Tout comme le coefficient  $a$ , cette composante continue n'intervient pas dans le calcul de la réflectivité sur la modulation, elle est filtrée. Ainsi, en calculant la réflectivité par cette méthode, on s'affranchit également de la perturbation introduite par la diffusion de la pompe.

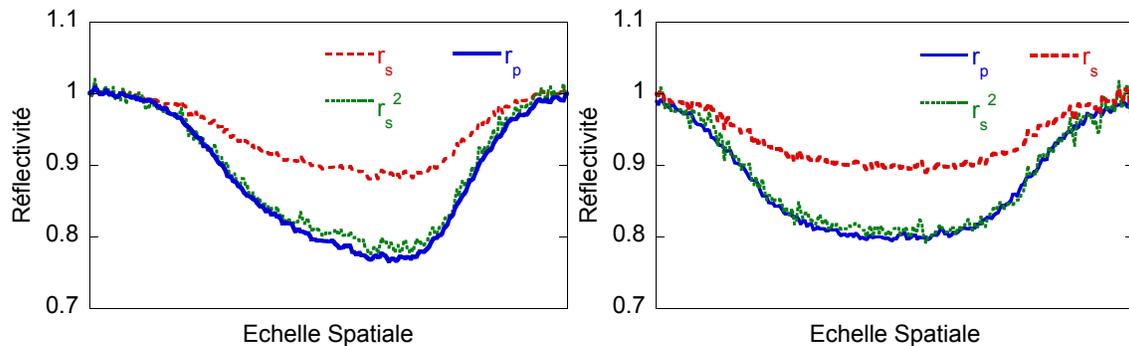


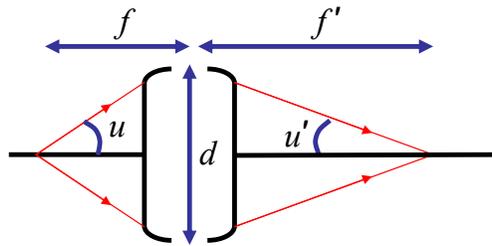
FIGURE 2.15 – Réflectivité calculée par deux méthodes différentes. Gauche : calculée sur l'intensité spectrale. Droite : calculée sur la modulation des franges.

### 2.4.2 Reprise d'image du faisceau sonde

La reprise d'image du faisceau sonde va jouer un rôle capital dans la mesure. Comme la phase et l'amplitude spectrale de la sonde sont mesurées au niveau du spectromètre, l'imagerie doit préserver au mieux ces quantités, l'information doit être transmise sans être déformée depuis la cible jusqu'au spectromètre. Sur le trajet, des éléments optiques limitent la quantité d'information recueillie et déforment le signal. Le but de cette section est de présenter le montage que nous avons utilisé et de quantifier les perturbations introduites par les différents éléments présents sur le trajet optique.

## 2.4.2.1 Choix du montage

**Ouverture et limite de Fourier d'un système optique** On appelle l'ouverture numérique  $ON$  le nombre sans dimension égal au produit de l'indice de réfraction dans lequel baigne le récepteur d'image par le sinus du demi angle au sommet  $u'$  du cône émergent  $ON = n_0 \sin u'$ . En photographie, il est plus commode d'utiliser l'ouverture relative (appelée aussi simplement ouverture, nombre d'ouverture ou F-Number) d'une lentille définie comme le rapport entre la distance focale et le diamètre de sa pupille d'entrée  $f_{\#} = f/d$ . Si une lentille possède un nombre d'ouverture de  $f_{\#} = a$ , on dira qu'elle ouvre à  $f/a$ .



L'ouverture du système d'imagerie est un paramètre clé, elle va conditionner la résolution de l'imagerie, dans un premier temps par le biais de la diffraction. Même pour un système parfaitement stigmatique, l'image d'une source ponctuelle n'est pas un point mais une tache entourée d'anneaux. Une source ponctuelle émet dans toutes les directions. Pour recréer une image ponctuelle à partir de cette source, il faut récupérer tous les rayons et le faire converger en un point, le point image. En diaphragmant par la dimension finie de l'optique, on limite l'ouverture et les effets de diffraction apparaissent, la tache s'agrandit.

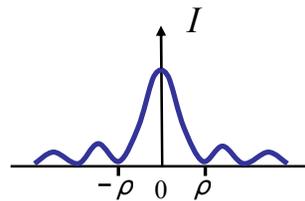


FIGURE 2.16 – Phénomène de diffraction provoquée par la présence d'un diaphragme qui limite l'ouverture du faisceau utile.

On montre en optique physique que le rayon  $\rho_e$  de la tache sur un écran vaut  $\rho_e = 1.22\lambda/(2 \sin u')$  lorsque l'image est formée dans l'air. Pour les petits angles, on écrit  $2 \sin u' \simeq d/f'$ . En appelant  $\gamma$  le grandissement, on obtient  $2 \sin u' \simeq d/\gamma f$ . Soit  $\rho_c$  le rayon de la tache rapporté sur la cible avec  $\rho_e = \gamma \rho_c$ , la résolution écrite au niveau de la cible devient :

$$\rho_c = 1.22 \lambda \frac{f}{d} = 1.22 \lambda f_{\#} \quad (2.24)$$

Vis à vis de la diffraction, il est donc intéressant d'utiliser un système optique ayant un  $f_{\#}$  petit, soit une grande ouverture pour pouvoir résoudre des objets petits sur la cible.

En optique ondulatoire, la diffraction va permettre d'expliquer la profondeur de champ d'un système optique caractérisée par son ouverture  $f_{\#}$ . Elle s'exprime avec la longueur de Rayleigh qui pour un faisceau gaussien vaut  $L_r = 2\pi w_0^2/\lambda$  avec  $w_0$  la demi-largeur du faisceau au point de focalisation. La valeur de  $w_0$  est liée à la limite de diffraction, on la calcule en utilisant l'équation (2.24) pour obtenir

$$L_r = \frac{1.22^2}{4} 2\pi\lambda f_{\#}^2 \quad (2.25)$$

ou encore numériquement :

$$L_r = 2.34 \lambda f_{\#}^2 \quad (2.26)$$

En optique géométrique, si l'objet est placé proche du foyer, la profondeur de champ  $p$  peut s'exprimer de la manière suivante [60] :

$$p = af \frac{2d}{d^2 - a^2} \quad (2.27)$$

avec  $a$  la taille minimale d'un objet que l'on peut résoudre (un objet ponctuel placé derrière le plan objet à une distance  $\approx p/2$  apparaîtra comme une tache de taille  $a$ ). En écrivant  $d \gg a$ , l'équation devient :

$$p = 2a \frac{f}{d} = 2af_{\#} \quad (2.28)$$

En utilisant finalement la limite de diffraction pour calculer  $a$ , on obtient une équation équivalente (2.26).

$$p = 2.44\lambda f_{\#}^2 \quad (2.29)$$

**Système optique envisagé** Le système optique peut être composé d'une ou plusieurs lentilles, de focales et de diamètres plus ou moins grands. En cherchant à augmenter l'ouverture, il est envisageable d'utiliser un objectif de microscope, d'autant plus que ces objectifs sont conçus pour corriger les aberrations. Ils ont généralement des nombres d'ouverture inférieurs à 1. De telles ouvertures impliquent de faibles profondeurs de champ et nous sommes limités par le déplacement en profondeur de la cible lors de la rotation (défauts du porte cible). Ce déplacement est de l'ordre de quelques  $\mu\text{m}$ , supérieur aux profondeurs de champ des objectifs de microscope. En effet, si  $f_{\#} = 1$ , la profondeur de champ est de l'ordre de  $1 \mu\text{m}$ . Par ailleurs, les grandes ouvertures des objectifs de microscope sont obtenus en réduisant la focale, et non en augmentant le diamètre d'entrée. Utiliser une telle optique signifie la placer très proche de la zone à imager. D'une part, de problèmes d'encombrement apparaissent et d'autre part, proche du foyer de la sonde, le flux laser qui traverse l'optique est très important et des nouveaux problèmes se posent comme la tenue au flux des optiques et l'intégrale B. Ajoutons

à ces effets néfastes sur l'imagerie la quantité de débris provenant des éjections de matière qui viendrait se déposer sur l'objectif. Pour ces raisons, nous avons choisi de ne pas utiliser d'objectifs de microscope pour imager la zone chauffée sur le spectromètre. Ils seront néanmoins utilisés à faible énergie pour imager la tache focale du faisceau pompe.

Nous avons opté pour la solution d'une lentille unique. Positionner une lentille signifie l'aligner parfaitement perpendiculairement à l'axe optique pour éviter l'astigmatisme (voir §2.4.2.3). En multipliant le nombre de lentilles, on accroit ce risque donc il est naturellement plus simple de n'en positionner qu'une et de la choisir de manière à ce qu'elle corrige un maximum d'aberrations<sup>3</sup>. Par ailleurs, n'utiliser qu'une seule lentille permet de conserver toute l'information depuis la lentille jusqu'au plan image. En effet, dans un système optique constitué de plusieurs lentilles, l'ouverture n'est pas limitée uniquement par la première lentille mais également par les suivantes. L'utilisation de lentille de champ devient nécessaire, ce qui complique la mise en place.

N'utiliser qu'une seule lentille possède un désavantage, celui de ne pas traverser le hublot en sortie d'enceinte en faisceau collimaté<sup>4</sup>. Nous montrons dans la suite que passer ce hublot en faisceau non parallèle ne pose pas de problème si la lentille est placée à l'intérieur de l'enceinte.

### 2.4.2.2 Traversée d'un hublot

Comme le système d'imagerie n'est constitué que d'une seule lentille de reprise se trouvant dans l'enceinte sous vide, le faisceau traverse un hublot et est transporté sur l'entrée du spectromètre là où se forme l'image. Le faisceau est donc convergent lors de la traversée du hublot (voir schéma 2.17). L'image formée après traversée du hublot sera déformée et la phase peut être modifiée. Deux problèmes se posent. D'une part, un hublot n'est pas un système stigmatique donc tous les rayons incidents ne vont pas converger en un point mais la zone de focalisation aura une certaine extension longitudinale notée  $\delta d$  sur le schéma. D'autre part, les deux rayons représentés sur le schéma vont se croiser en un point mais la phase de chaque rayon ne sera pas la même en ce point.

Sans hublot, un rayon défini par son angle  $\theta$  traversera l'axe optique à une distance  $L$  du hublot (4 m dans notre set-up). La présence du hublot va décaler le point de convergence et

---

3. Dans un système optique complexe comme un objectif photographique ou de microscope, les fabricants utilisent généralement un jeu de lentilles convergentes et divergentes pour compenser les aberrations de chacune.

4. Pour traverser le hublot en faisceau parallèle, au moins 2 lentilles doivent être utilisées. Le foyer de la première doit être placé au niveau de la zone à imager.



La phase acquise après un trajet  $l$  s'écrit  $\phi = kl$  avec  $k$  le vecteur d'onde. Dans le vide il s'écrit  $k_0 = \omega_0/c$  et s'écrit dans un diélectrique  $k = N\omega_0/c$  avec  $N$  l'indice optique. On néglige ici le terme due à la dispersion de vitesse de groupe. La différence de phase au point  $A$  entre les 2 rayons représentés est alors :

$$\delta\phi = k_0[(Na_1 + a_2) - (b_1 + Nb_2)], \quad (2.32)$$

Nous obtenons ainsi une valeur de phase très faible de l'ordre de  $5 \cdot 10^{-3}$  mrad pour une sonde à 800 nm donc bien inférieure au mrad. Le passage du hublot quand la lentille est placée à l'intérieur de l'enceinte n'est donc pas un problème. En revanche, si la lentille est placée à l'extérieur de l'enceinte, la passage du hublot s'effectue avec un faisceau très divergent.  $\theta_{Max}$  est de l'ordre de  $3^\circ$  pour une lentille  $\phi = 50$  mm placée à 0.5 mètres de la cible. L'astigmatisme aura une influence bien plus importante et le déphasage  $\delta\phi$  sera de l'ordre de 20 mrad. La perturbation introduite par le hublot n'est dans ce cas plus négligeable.

### 2.4.2.3 Aberrations des lentilles

Les aberrations sont les défauts d'un système optique qui font que l'image d'un point ou d'un objet étendu est mauvaise, elles dépendent généralement de l'ouverture du système  $f_\#$  et/ou de la longueur d'onde. On dénote deux principaux types d'aberrations : Les aberrations d'ordre physique et les aberrations d'ordre géométrique.

Les dioptries sphériques utilisés ne sont en général pas des surfaces parfaitement stigmatiques et des aberrations d'ordre géométrique apparaîtront. On trouvera :

- **Aberration de sphéricité** : Les rayons provenant du bord de la lentille ne se focalisent pas au même endroit que les rayons provenant du centre donc le foyer de la lentille est étalé spatialement le long de l'axe optique.

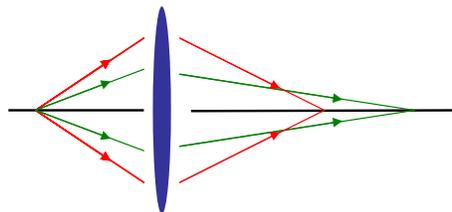


FIGURE 2.18 – Illustration de l'aberration de sphéricité.

En appelant  $\rho_s$  la taille caractéristique d'une tache, on montre que [60]

$$\rho_s \propto f \left( \frac{d}{f} \right)^3 \quad (2.33)$$

Donc plus le système est diaphragmé, plus les aberrations diminuent. Les rayons provenant du bord de la lentille sont coupés.

- **Astigmatisme et défaut de coma** sont des aberrations qui apparaissent lorsque le point objet est en dehors de l'axe optique. Compte tenu de la taille des objets à imager ( $\sim 50 \mu\text{m}$ ) comparé aux tailles des focales ( $\sim 20 \text{cm}$ ), ces aberrations jouent un rôle mineur si l'objet est effectivement placé sur l'axe optique de la lentille. Pour cette raison, les lentilles sont positionnées par auto-collimation.

Si l'on diaphragme un système optique, les aberrations de sphéricités s'atténuent mais les défauts dûs à la diffraction augmentent. Nous voyons apparaître ici une cause importante de la limitation de la qualité des instruments optiques. Il faut trouver un compromis entre ces différentes aberrations pour choisir une ouverture. Pour ce faire, à l'aide d'un montage simple consistant en une lentille qui image une lame de rasoir sur une caméra, on se propose de caractériser la résolution des doublets achromatiques LAO [61] dont nous disposons. Comme présentée sur la figure 2.19, la lentille de 50 mm de focale offre une ouverture de  $f/2$  mais est plus aberrante qu'une lentille de focale 200 mm diaphragmée à  $f/6.5$ . En augmentant l'ouverture, les franges d'interférences se resserrent et la pente au niveau de la discontinuité se raidit mais l'image se déforme.

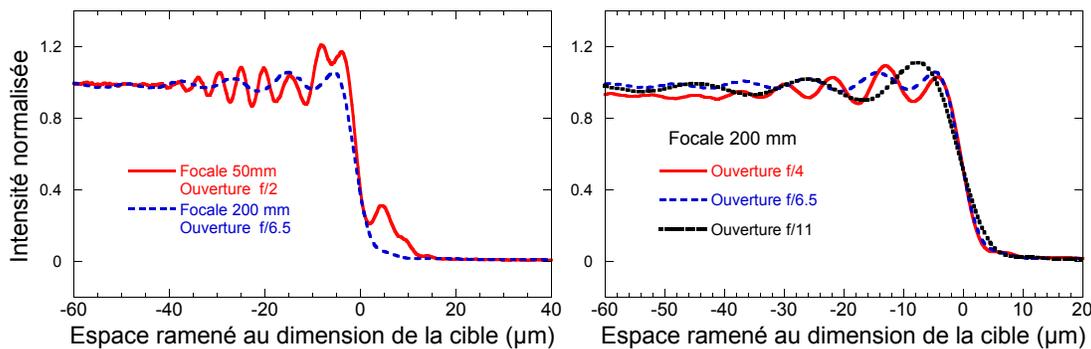


FIGURE 2.19 – Coupe au travers de l'image d'une lame de rasoir par 2 lentilles (Doublets Achromatiques) avec différentes ouvertures éclairée par une diode laser à 785 nm.

Nous nous sommes alors équipés d'un doublet aplanétique LAP [61] de 200 mm de focale de ouvert à  $f/5$  conçu pour corriger les aberrations géométrique à une longueur d'onde. Dans ce cas, nous avons pu vérifier que la résolution n'était effectivement limitée que par l'ouverture (limite de diffraction). En revanche, des problèmes d'aberrations chromatiques se posent, comme nous allons le décrire maintenant.

Les **aberrations chromatiques** font parties des aberrations d'ordre physique. L'indice op-

tique de la lentille dépend de la longueur d'onde de la radiation (dispersion) donc la distance focale dépend elle aussi de la longueur d'onde. Le chromatisme est quantifié en décalage de distance focale - par rapport à la focale d'une longueur d'onde de référence, 400 ou 800 nm ici - en fonction de la longueur d'onde. Autour d'une longueur d'onde centrale, les décalages évoluent quasiment linéairement avec  $\lambda$ . Sont présentés dans le tableau suivant :

- les dérivées des décalages de focale de chaque lentille utilisée pour les résultats présentés dans ce manuscrit. Ils sont exprimés en  $\mu\text{m}$  de focale / nm de spectre,
- les profondeurs de champ dépendantes du nombre d'ouverture (Eq. (2.26)),
- l'écart de focale sur la largeur à mi hauteur du spectre ( $\Delta\lambda = 50\text{ nm}$  pour une onde centrée sur 800 nm et  $\Delta\lambda = 25\text{ nm}$  autour de 400 nm).

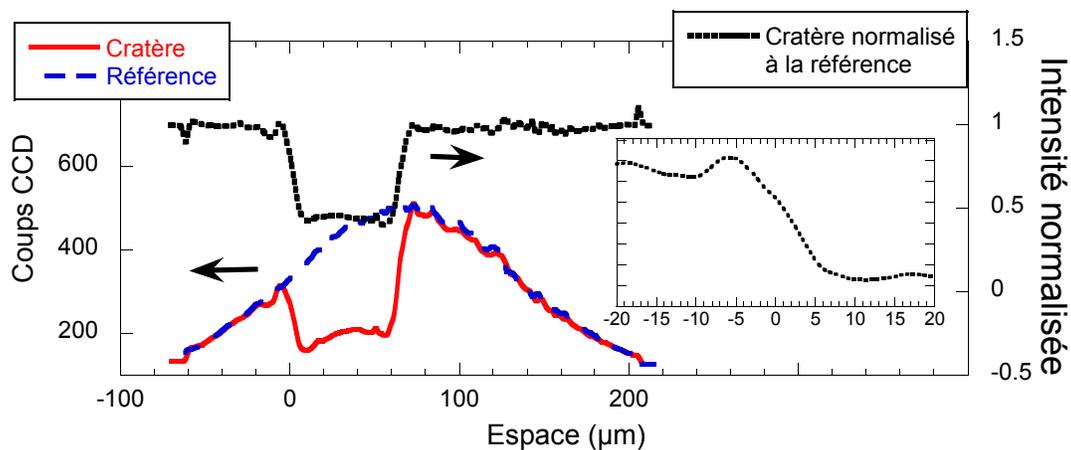
Lentille	$\lambda_0$	Dérivée du décalage ( $\mu\text{m}/\text{nm}$ )	Profondeur de champ( $\mu\text{m}$ )	Écart de focale $\Delta f(\mu\text{m})$
LAO	800	3.2	30	160
LAO	400	24	15	600
LAP	800	15	47	750
LAP	400	140	23.4	3500

Le tableau montre que les écarts de focale sont bien supérieurs aux profondeurs de champ, la mise au point n'est pas la même d'un bout à l'autre du spectre. En d'autres mots, imager un objet avec une telle largeur spectrale donne nécessairement une image floue, une bonne mise au point ne peut s'effectuer qu'en imageant une longueur d'onde particulière et non tout le spectre, cela revient à effectuer un filtrage. Pour "filtrer", on effectue un "zoom" dans le spectre par utilisation d'un réseau très dispersif au niveau du spectromètre.

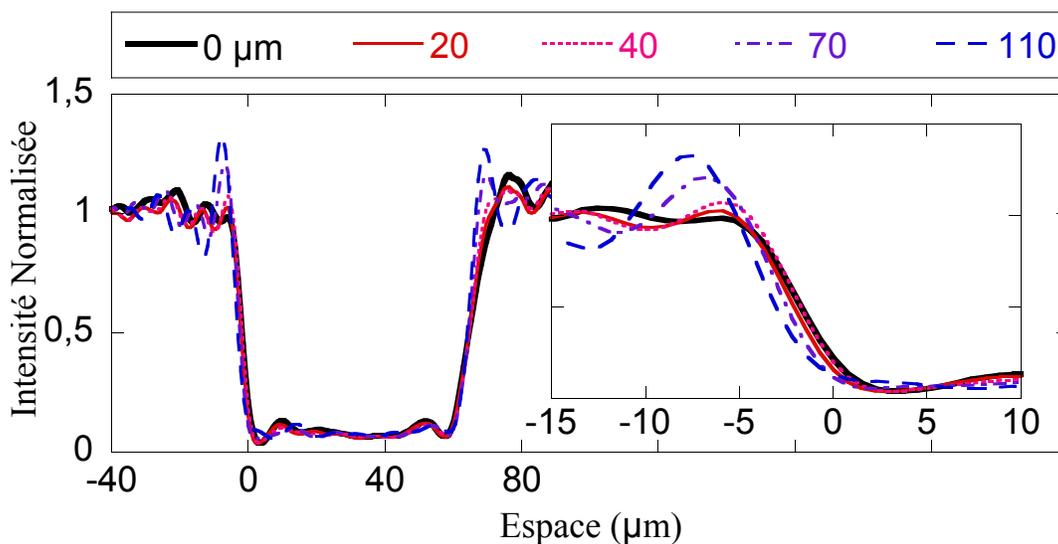
En conclusion, sachant que le doublet aplanétique LAP possède une résolution spatiale nettement meilleure que le doublet achromatique LAO ( $5\mu\text{m}$  contre  $10\mu\text{m}$ ), il sera utilisé lors des expériences avec des sondes à 800 nm. En revanche à 400 nm, le LAP est beaucoup plus chromatique que le LAO donc nous avons utilisé le LAO à cette longueur d'onde.

#### 2.4.2.4 Mise au point

La mise au point est un paramètre capital. La mesure de phase et de réflectivité repose sur le principe que le plan objet est équivalent au plan image en terme d'intensité et de phase. La mise au point est réalisée expérimentalement en imageant un cratère laissé après un tir de



(a) Image par doublet achromatique LAO. L'image est prise après tir, une fois le moteur arrêté donc le cratère est aligné sur la tache focale de la sonde de manière approximative. Insertion : La résolution est de l'ordre de  $10 \mu\text{m}$  ce qui est en accord avec les tests réalisés sur lame de rasoir (voir paragraphe 2.4.2.3)



(b) Image par doublet aplanétique LAP pour plusieurs position de lentille (changement de la mise au point en  $\mu\text{m}$ ). Insertion : La résolution est de l'ordre de  $5 \mu\text{m}$ , soit la limite de diffraction.

FIGURE 2.20 – Coupe au centre d'un cratère imagé par le faisceau sonde avec un doublet achromatique et un doublet aplanétique.

pompe. Pour des raisons d'aberrations chromatiques, la mise au point est faite directement à partir des images provenant du spectromètre qui effectue un zoom dans le spectre. Sur la figure 2.20 sont présentés des images de cratère. Chaque cratère fait une cinquantaine de  $\mu\text{m}$  de diamètre, ce qui est largement supérieur aux résolutions des lentilles. En particulier, les images prises avec le doublet achromatique montrent des résolutions d'environ  $10\ \mu\text{m}$  alors que le doublet aplanétique permet, comme attendu, des résolutions de  $5\ \mu\text{m}$ .

Concernant la profondeur de champ, sur la figure 2.20(b), les images ont été prises pour plusieurs mises au points (la lentille est translatée selon l'axe optique et la distance cible-lentille varie). On vérifie ainsi l'ordre de grandeur théorique de la profondeur de champ qui est ici de  $45\ \mu\text{m}$  pour une ouverture de  $f/5$ . Jusqu'à un déplacement de  $+40\ \mu\text{m}$ , l'image évolue peu. En revanche, si le déplacement est supérieur, l'image devient floue. Des franges d'interférences apparaissent et se décalent vers l'extérieur. Il nous est donc possible de nous placer dans les ordres de grandeurs de la profondeur de champ.

### 2.4.3 Le spectromètre

Un spectromètre a simplement pour but de décomposer la lumière en entrée en ses différentes longueurs d'ondes. Le spectre en sortie est détecté par une caméra CCD. Nous utilisons un spectromètre imageur dans la configuration Fastie-Ebert. Il est constitué d'une fente d'entrée - dispersant la lumière - positionnée au foyer d'un miroir sphérique. Après réflexion sur ce miroir, le faisceau collimaté se réfléchit sur un réseau avant de repartir en direction du miroir sphérique. Ensuite, l'image de la fente est formée sur une caméra CCD. Le miroir sphérique possède une focale de 1 m. En effet, une grande focale augmente la dispersion et réduit l'astigmatisme<sup>5</sup>.

En appelant  $i$  et  $i'$  respectivement les angles d'incidence et réfléchi des rayons sur le réseau, la relation reliant ces angles est :

$$\sin i + \sin i' = m \frac{\lambda}{p} \quad (2.34)$$

où  $m$  est l'ordre d'interférence et  $p$  le pas du réseau. Après différentiation de cette relation<sup>6</sup> sur les variables  $i'$  et  $\lambda$  puis en supposant des angles petits<sup>7</sup>, la relation de dispersion du spectromètre s'écrit :

$$\Delta x = f \frac{m}{p \cos i'} \Delta \lambda \quad (2.35)$$

---

5. En configuration Fastie-Ebert, 1 unique miroir sphérique est utilisé hors axe, les faisceaux s'y réfléchissent à 2 reprises. Si sa focale est suffisamment longue, les optiques restent proche de l'axe et l'astigmatisme est réduit. Pour palier cette inconvénient, le miroir sphérique peut être remplacé par 2 miroirs toriques.

6.  $\cos i' \Delta i' = m \Delta \lambda / p$

7.  $\Delta i' = \Delta x / f$

avec  $f$  la focale du miroir sphérique et  $x$  la position spatiale sur la caméra CCD. Dans une telle configuration (grande focale), les rayons provenant du miroir sphérique se réfléchissent sur le réseau et repartent en direction du miroir sphérique donc  $i \approx i'$ . Cette constatation est utilisée pour calculer  $i'$ . Sachant qu'un pixel fait  $13 \mu\text{m}$  de large, qu'un prisme de Wollaston diaphragme le faisceau devant la caméra à une largeur de 1 cm, on obtient pour des réseaux peu dispersif (200 traits/mm) et très dispersif (1800 traits/mm) les paramètres suivant :

Réseau(tr/mm)	$\lambda_0$	Dispersion (pixel/nm)	Largeur spectrale sur CCD( nm)
200	800	15.43	49.8
200	400	15.39	50.0
1800	800	199.5	3.8
1800	400	148.4	5.2

En utilisant le réseau à 1800 traits/mm, nous cherchons à augmenter au maximum la dispersion du spectromètre pour 2 raisons. D'une part, comme présenté au paragraphe 2.1.2, une forte dispersion augmentera la valeur de l'interfrange en nm et permettra d'augmenter le délai  $\Delta t$  entre les 2 impulsions sondes. D'autre part, on réduit la largeur spectrale sur laquelle est effectuée la mesure pour réduire au maximum les aberrations chromatiques des lentilles. La mesure n'est donc pas faite sur les 50 nm de spectre mais sur une plage de 3.8 et 5.2 nm respectivement à 800 et 400 nm. Notons que la largeur initiale du spectre est effective sur la cible. Ainsi, malgré ce zoom dans le spectre, nous conservons des impulsions de 30 fs sur cible.

Plusieurs phénomènes tels que

- la largeur de la fente et les aberrations du miroir sphérique,
- le pouvoir de résolution intrinsèque,

vont contribuer à limiter le pouvoir de résolution du spectromètre.

### Largeur de la fente et aberrations du miroir sphérique

Le principe du spectromètre est basé sur l'imagerie de la fente d'entrée sur la caméra CCD. L'image en sortie possède 2 dimensions. Une spatiale, le long de la fente et une spectrale. La dimension correspondant à la largeur de la fente sera confondue avec la dimension spectrale donc, la largeur de la fente aura une influence directe sur la résolution spectrale. Nous avons donc tout intérêt à choisir une fente la plus fine possible, à condition d'avoir un flux lumineux suffisant pour détecter du signal sur la caméra. Sachant que nous accumulons

environ 1000 tirs en une seule acquisition, et que nous disposons d'une caméra refroidie à  $-40^{\circ}\text{C}$  pour réduire le bruit thermique, nous pouvons utiliser une fente de  $25\ \mu\text{m}$ .

La largeur de la fente est mesurée en plaçant le réseau à l'ordre 0. La fente est imagée sur la caméra et il est possible d'apprécier sa largeur en pixel. Nous trouvons une largeur de 3 pixels FWHM dans notre configuration. On calculera le pouvoir de résolution en divisant la largeur de la fente par la dispersion.

Le miroir sphérique possède un diamètre de 10 cm ce qui lui confère une ouverture de  $f/10$ . La limite de diffraction (voir paragraphe 2.4.2.1) est alors de l'ordre de  $10\ \mu\text{m}$  pour une sonde à 800 nm et de l'ordre de  $5\ \mu\text{m}$  à pour une sonde à 400 nm ce qui est plus petit que la largeur de la fente. L'ouverture du miroir sphérique n'est donc pas un facteur limitant la résolution. De plus, ce phénomène est pris en compte lors de l'image de la fente.

### Pouvoir de résolution intrinsèque

L'image donnée par un réseau d'une fente infiniment fine éclairée par une radiation parfaitement monochromatique de longueur d'onde  $\lambda$  n'est pas réduite à un pic de Dirac mais possède une largeur liée à la taille du réseau. Le pouvoir de résolution d'un spectromètre est donnée par [62] :

$$\frac{\lambda}{\Delta\lambda} = Nm \quad (2.36)$$

avec  $N$  le nombre de traits éclairés du réseau et  $m$  l'ordre d'interférence.

### Comparaison "Pouvoirs de résolutions / Interfrange spectral"

Les réseaux utilisés ont des largeurs de 5 cm. En utilisant la dispersion des réseaux calculée plus haut et l'équation (2.36), les pouvoirs de résolution sont calculés et comparés à la largeur de la fente dans le tableau suivant.

réseau(tr/mm)	$\lambda_0$	Pouvoir de résolution intrinsèque (pixel)	largeur de la fente (pixel)
200	800	1.23	3
200	400	0.6	3
1800	800	1.77	3
1800	400	0.65	3

En conclusion, la largeur de la fente est le principal facteur limitant la résolution. Pour mener à bien l'expérience, l'interfrange déterminé par le temps séparant les deux impulsions

sondes  $\Delta t$  doit être largement supérieur à la résolution du spectromètre. Avec le réseau à 1800 traits/mm, nous utilisons des délais de  $\Delta t = 24$  ps pour une sonde à 800 nm et  $\Delta t = 6$  ps pour une sonde à 400 nm. Sachant que  $\Delta\omega = 2\pi/\Delta t$ , après avoir différencié la relation  $2\pi/\lambda = \omega/c$ , il vient :

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda^2}{c\Delta t} \quad (2.37)$$

Utilisant à nouveau les valeurs de dispersion calculées plus haut, nous obtenons des valeurs théoriques d'interfrange de 17.77 pixels à pour une sonde à 800 nm et de 13.19 pixels à 400 nm ce qui est parfaitement en accord avec les mesures expérimentales d'interfrange et bien supérieur à la résolution du spectromètre

## 2.4.4 Mélange de polarisation et réglage de l'angle du prisme de Wollaston

### Mélange de polarisation

Comme nous l'avons vu, nous cherchons à mesurer - avec une précision de 1 % - simultanément les informations dans les 2 polarisations S et P. Avant focalisation sur la cible, le faisceau sonde est polarisé linéairement devant la cible dans une polarisation oblique. Il possède une composante  $E_s$  et une composante  $E_p$ . Soit  $E_{s,p}$  le champ électrique avant réflexion sur la cible. Suite à un tir laser ou un tir de référence, ce champ devient après réflexion sur la cible :

$$\begin{cases} E_{s,p}^{(Tir)} &= R_{s,p}^{(Cible-Chaude)} E_{s,p} \\ E_{s,p}^{(Ref)} &= R_{s,p}^{(Cible-Froide)} E_{s,p}. \end{cases} \quad (2.38)$$

Pour transporter le faisceau depuis la cible vers le spectromètre, le faisceau est réfléchi sur une série de miroirs de réflectivité  $R$ , passe au travers d'un hublot de transmittivité  $T_h$  et d'un cube séparateur 50/50 de transmittivité  $T_c$ . Si le faisceau est réfléchi sur  $i$  miroirs, les champs au niveau du spectromètre deviennent :

$$\begin{cases} E_{s,p}^{(Tir-Spectro)} &= E_{s,p}^{(Tir)} R_{s,p}^i T_h T_c \\ E_{s,p}^{(Ref-Spectro)} &= E_{s,p}^{(Ref)} R_{s,p}^i T_h T_c. \end{cases} \quad (2.39)$$

En divisant la première équation du système ci-dessus par la deuxième, comme les optiques présentes sur le trajet depuis la cible vers le spectromètre sont les mêmes pour le tir et la référence, on retrouve naturellement :

$$\frac{E_{s,p}^{(Tir-Spectro)}}{E_{s,p}^{(Ref-Spectro)}} = \frac{R_{s,p}^{(Cible-Chaude)}}{R_{s,p}^{(Cible-Froide)}}, \quad (2.40)$$

donc à  $E_s$  correspond  $R_s$  et à  $E_p$  correspond  $R_p$ , les polarisations sont indépendantes. En réalité, ce calcul n'est vrai que si tous les plans d'incidences de chaque optique (cible + miroirs)

sont les mêmes car le plan d'incidence définit les directions S et P. Si le plan d'incidence est différent sur certaines optiques par rapport à la cible, lors de la réflexion, les directions S et P du champ incident sont projetées sur les directions S et P du miroir. Les directions ne sont pas les mêmes alors les polarisations sont mélangées et on ne peut plus isoler  $R_s^{(Cible)}$  et  $R_p^{(Cible)}$ . En pratique, si de tels mélanges apparaissent, un faisceau polarisé purement S ou P avant la cible devient elliptique à l'entrée du spectromètre.

Expérimentalement, le plan d'incidence de la cible est fixé mécaniquement par l'axe de rotation du porte cible. Pour une raison de stabilité (robustesse mécanique), nous ne disposons pas d'ajustement fin sur cet angle donc le plan d'incidence du système est fixé par celui de la cible. Ensuite, les miroirs sont positionnés un par un au mieux par rapport à ce plan d'incidence par auto-collimation puis rotation de la monture. On contrôle ensuite la séparation en polarisation.

### **Contrôle de la séparation en polarisation et réglage du prisme de Wollaston**

Un prisme de Wollaston est positionné devant la camera CCD. Ce polariseur sépare le faisceau incident en 2 faisceaux de directions différentes et de polarisations linéaires orthogonales entre elles. Il doit être réglé de manière à ce que ces 2 directions de sortie correspondent aux directions S et P relativement à la cible. En outre, son réglage permettra de vérifier que le montage ne mélange pas les polarisations.

Si l'on impose une polarisation S devant la cible, quelles que soient les réflectivités des miroirs, si le montage ne mélange pas les polarisations, le faisceau se retrouvera S devant le spectromètre. En tournant le prisme de Wollaston, il existe une solution (un certain angle) pour laquelle l'un des deux faisceaux après le prisme est totalement éteint. En revanche, si le montage mélange les polarisations, le faisceau deviendra elliptique devant le spectromètre. Dans ce cas, quelque soit l'angle du prisme de Wollaston, il est impossible d'éteindre complètement l'un des 2 faisceaux.

Pour régler ce prisme, un polariseur est placé dans l'enceinte sur la voie sonde avant la cible. Ce dernier n'étant pas calibré angulairement, il est placé dans une polarisation proche de S. Le prisme de Wollaston est tourné pour éteindre au mieux la polarisation P, celle-ci n'étant pas éteinte parfaitement car le faisceau est à ce stade elliptique devant le prisme. Ensuite, l'angle du polariseur est modifié dans l'enceinte pour se rapprocher de la polarisation S puis le prisme est tourné de nouveau pour éteindre la polarisation P. Celle-ci doit être éteinte plus précisément que dans l'étape précédente. De manière récursive, on trouve ainsi le couple [angle polariseur ; angle prisme de Wollaston] compatible avec le montage. Si cette solution existe alors le montage ne mélange pas les polarisations et le prisme de wollaston est réglé. On vérifie ensuite en tournant le polariseur précisément de  $90^\circ$  que le résultat est bien équivalent

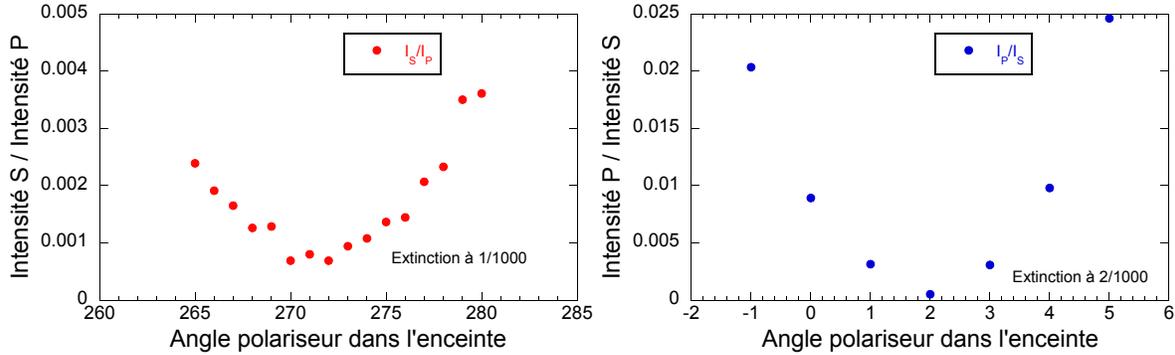


FIGURE 2.21 – Extinction des polarisations.

dans l'autre direction de polarisation. En figure 2.21 sont présentés les résultats, l'extinction du S par rapport au P est de 1/1000 et celle P par rapport au S est de 2/1000, ces résultats sont satisfaisants<sup>8</sup>.

### 2.4.5 Pertinence des mesures spectrales

Le principe du diagnostic repose sur une interférence dans le domaine des fréquences. Les deux impulsions nommées impulsion référence et impulsion sonde doivent avoir une plage fréquentielle commune pour interférer et les franges d'interférences seront visibles sur cette plage commune. On se place en mode absolu, l'impulsion référence n'est pas modifiée et le champ électrique de l'impulsion sonde devient  $R(t)E_2(t)$  avec  $R \in \mathbb{C}$  après réflexion sur la cible chauffée. En notant  $\delta\tau$  le temps caractéristique de variation brutale de  $R(t)$ , en vertu du principe de Fourier, cette variation brutale sera codée sur une plage fréquentielle de largeur  $\delta\omega \simeq 1/\delta\tau$ . D'une part, si cette largeur spectrale est plus large que le spectre de l'impulsion sonde, une partie de l'information ne se révélera pas lors de l'interférence et sera perdue. Il ne sera pas possible de retrouver la valeur de  $R(t)$  précisément en déconvoluant le système. D'autre part, la perturbation sera codée sur une certaine largeur spectrale donc, même en utilisant des impulsions comprimées, les valeurs de phase et de réflectivité mesurées ne seront pas constantes sur tout le spectre. Naturellement, si  $R(t)$  est constant lors du passage de l'impulsion sonde, la largeur spectrale nécessaire pour son codage tend vers 0. Le spectre de  $R(t)E_2(t)$  apparait comme la convolution d'un Dirac par la gaussienne de l'impulsion laser. Après division par un spectre de référence, phase et réflectivité mesurées apparaissent constantes sur toute la largeur spectrale.

8. Par cette méthode de contrôle, nous nous sommes rendus compte le hublot de sortie de la sonde modifiait de manière dramatique les polarisations au cause d'une contrainte mécanique au sein de celui-ci. Une faisceau polarisé linéairement S ou P se retrouvait après passage au travers du hublot en polarisation elliptique. Le mélange de polarisation a cessé une fois la contrainte relâchée.

L'ordre de grandeur de la résolution temporelle est normalement défini par les temps d'impulsions sondes comprimées au mieux. Celles-ci sont de l'ordre de 25 à 30 fs. Le problème qui se pose est le suivant : si la mesure effectuée est une moyenne sur la résolution temporelle de la valeur que prend réellement un signal alors les mesures ont un sens physique. Si, en revanche, les mesures sont perturbées par une variation brutale de réflectivité et prennent des valeurs qui ne sont pas des moyennes temporelles, alors elles peuvent perdre leur sens physique. Naturellement, si le temps caractéristique de la perturbation est plus grand que la résolution temporelle, alors les mesures seront constantes sur tout le spectre et le problème ne se pose pas. Pompe et sonde sont de la même durée donc nous nous attendons à avoir des variations importantes de réflectivité sur des temps de l'ordre de la résolution temporelle.

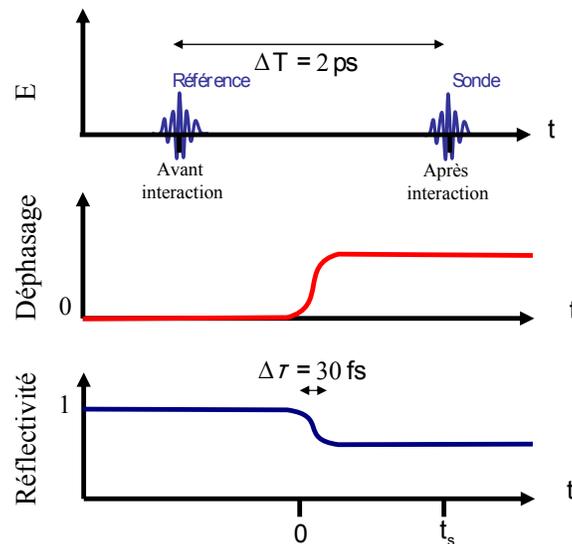


FIGURE 2.22 – Profils du déphasage, de la réflectivité et des impulsions lasers utilisés dans le calcul numérique.

Pour ces raisons, nous cherchons à savoir dans quelle limite le codage spectral d'une variation brutale de  $R(t)$  influence les mesures. Nous étudions alors le problème suivant de manière numérique. Comme présenté sur le schéma 2.22, nous définissons

- Une réflectivité  $R(t) = r(t)e^{i\phi(t)}$  où  $\Delta\tau$  est le temps caractéristique de la perturbation pris à 30 fs. Cette perturbation apparaît à  $t = 0$ .
- Deux impulsions sondes gaussiennes identiques séparées par un temps  $\Delta t$ . Elles sont comprimées au mieux avec une durée FWHM en intensité de 30 fs. En mode absolu, la mesure est réalisée par l'impulsion sonde en  $t = t_s$ .

Pour plusieurs temps de sonde (plusieurs  $t_s$ ), nous calculons numériquement le spectre équivalent à celui présent sur la CCD en sortie du spectromètre puis nous lui appliquons le traitement expliqué au paragraphe 2.1.2 destiné à recalculer  $P(\omega)$ . Si la sonde ne passe pas au moment de la perturbation de réflectivité (Fig.2.23 gauche pour  $t_s = \pm 100$  fs  $> 30$  fs) alors  $P(\omega)$  sera constant et égal à  $R(t = t_s)$ . Si la sonde passe à un moment proche de la perturbation,  $R(t)$  évolue vite et la phase ne sera pas constante dans le spectre (voir figure 2.23 de gauche pour  $t \simeq 0$ ).

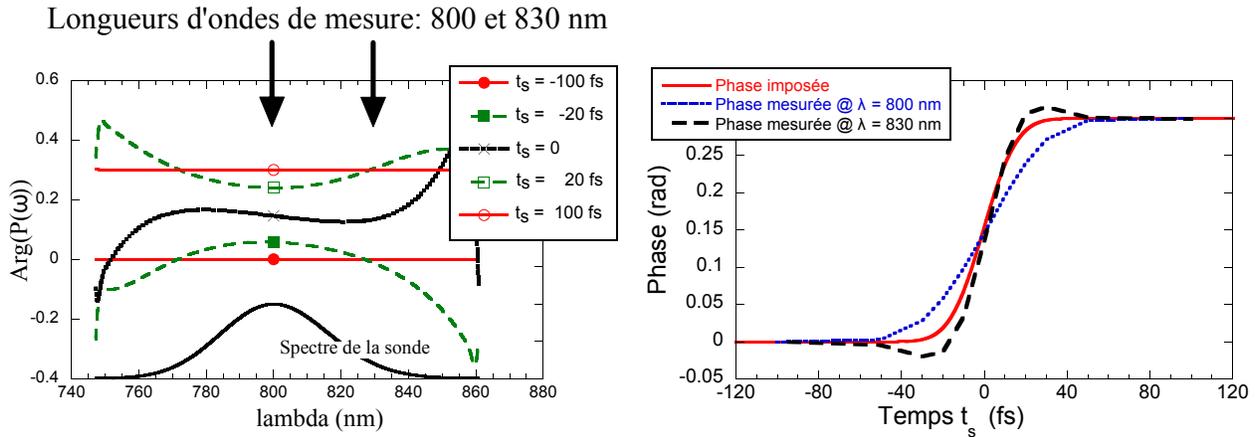


FIGURE 2.23 – Gauche : Phase spectrale mesurée pour plusieurs  $t_0$  - Droite : Phase mesurée à plusieurs endroits dans le spectre.

Expérimentalement, on rappelle que tout le spectre n'est pas visible sur la caméra mais seulement une portion (4 à 5 nm). Ce zoom dans le spectre permet deux choses : d'une part de travailler avec des  $\Delta t$  grands, d'une vingtaine de ps et d'autre part de limiter les aberrations chromatiques dans la lentille d'imagerie. La mesure est donc faite à une longueur d'onde particulière du spectre. Si la mesure est faite au centre du spectre (i.e. 800 nm pour cette simulation, voir figure 2.23 de droite), la mesure apparaît comme la convolution de signal réel sur la résolution temporelle. Le signal prend alors des valeurs physiques qui ont un sens. En revanche, lorsque la mesure n'est pas faite au centre du spectre (i.e. 830 nm pour cette simulation), la phase présente des oscillations lors de la montée. Elle n'est pas la valeur réelle moyennée sur la résolution temporelle donc ces mesures n'ont aucun sens physique.

Conscient du problème dans les dernières campagnes expérimentales, nous avons soigneusement réglé le spectromètre pour réaliser les mesures au centre du spectre. En revanche, lors d'une expérience sur le cuivre, les mesures ont été faites sans prendre en compte cette précaution et nous avons obtenu les déphasages présentés en figure 2.24, la phase y prend des valeurs négatives. Elle pourrait trouver une interprétation physique par le biais du modèle de Drude et serait le signe d'une augmentation des fréquences de collision électronique avant

augmentation de la densité électronique (voir §3.2.2). Cependant, sachant que la mesure n'a pas été réalisée au centre du centre, un doute sur l'interprétation subsiste.

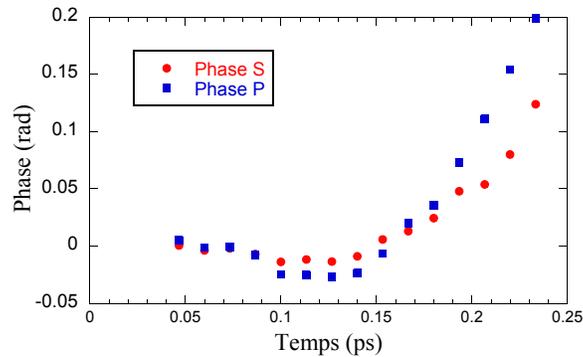


FIGURE 2.24 – Phase mesurée sur du cuivre à une fluence de  $3.5 \text{ J/cm}^2$  au début de l'interaction. La phase prend des valeurs négatives qui peuvent ne pas être physique. Le 0 temporel est ici arbitraire.

### 2.4.6 Résolution en phase et réflectivité

La résolution intrinsèque du diagnostic s'obtient en mesurant les phases et les réflectivités sur 2 tirs de référence (une référence sert de "tir" sans pompe et l'autre sert de référence). On s'attend naturellement à mesurer une réflectivité de 1 et un déphasage nul. On construit alors un histogramme sur les valeurs des phases et des réflectivités le long de la dimension spatiale pour obtenir les résultats présents en figure 2.25. Les résolutions sont donc inférieures à 10 mrad en phase et à 1% en réflectivité.

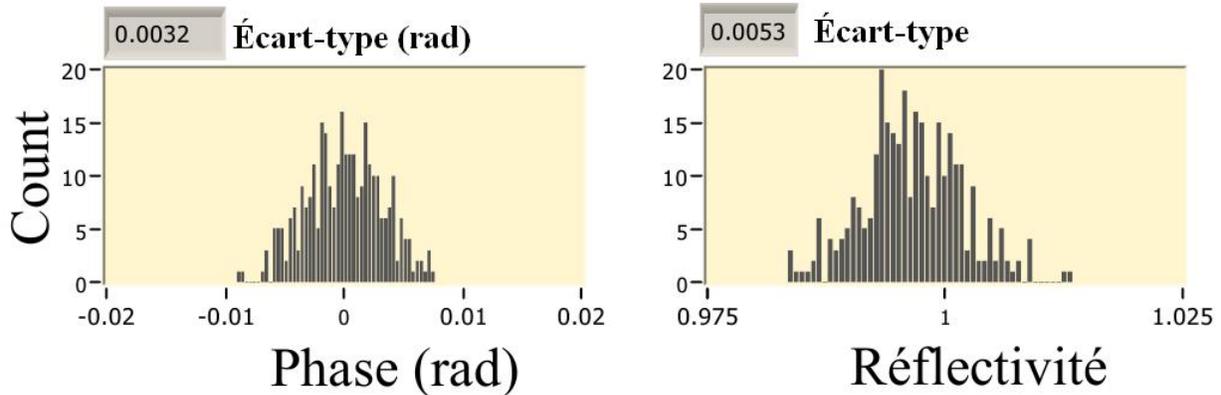


FIGURE 2.25 – Histogramme des phases et réflectivité sur 2 tirs de référence.

## 2.5 Voie pompe

### 2.5.1 Focalisation de la pompe sur la cible

La pompe est focalisée sur la cible par une lentille. La taille de la tache focale doit être choisie de manière à être largement plus grande que la résolution de l'imagerie de la sonde - 5 à 10  $\mu\text{m}$  - et largement plus grande que la précision du porte cible, environ 5  $\mu\text{m}$ . Pour ces raisons, nous avons choisi de travailler avec des taches focales de 50  $\mu\text{m}$  FWHM. Des taches plus grandes sont réalisables mais elles poseraient des problèmes supplémentaires. En effet, elles prendraient plus de place sur la cible et, lors d'une acquisition, il faut éviter que les tirs successifs ne se recouvrent. De plus, plus la tache est grosse, plus la fluence qu'il est possible d'atteindre est faible. L'énergie en entrée de salle est limitée à 10 mJ pour la pompe et la sonde.

La taille de la tache focale  $\rho_c$  est définie par l'ouverture de la lentille qui focalise (cf limite de diffraction §2.4.2.1) :

$$\rho_c = 1.22 \lambda \frac{f}{d} \quad (2.41)$$

Pour modifier la taille de la tache, il est possible de jouer sur la focale de la lentille  $f$ , ou de jouer sur son diamètre  $d$ . Si l'on utilise de grandes focales, nous sommes rapidement limités par l'encombrement dans l'enceinte et la tenu au flux des miroirs de renvoi positionnés après la lentille. Nous utiliserons une lentille de 200 mm de focale et nous jouerons sur le diamètre de la pinhole devant la lentille pour modifier la taille de la tache focale. En pratique, nous prendrons une pinhole de 4 mm de diamètre. Diaphragmer la lentille qui focalise plutôt que d'utiliser une longue focale possède 2 avantages supplémentaires. Les déplacements de la tache focale sur la cible sont nettement moins sensibles au dépointé du laser. En effet, si l'angle de dépointé est égal à  $\delta\theta$ , le déplacement sur la cible de la tache focale est de  $f \sin(\delta\theta) \simeq f\delta\theta$ . Il dépend de  $f$  et non de  $d$ . Diaphragmer le faisceau possède un deuxième avantage, celui de sélectionner la partie centrale du faisceau. Juste après la pinhole, le faisceau est parfaitement circulaire et son front de phase est plus plat. On optimise ainsi la proportion d'énergie effectivement dans la tache focale.

Pour caractériser la tache focale, deux lames prismatiques (wedge) sont placées en sortie du compresseur pour diminuer l'énergie tout en conservant les mêmes caractéristiques de faisceau. Ensuite, la tache focale est imagée par un objectif de microscope et des densités optiques additionnelles viennent en soutien devant le chip de la CCD pour baisser l'énergie. La tache focale mesurée pour une lentille de 200 mm de focale diaphragmé à 4 mm est présentée en figure 2.26, on retrouve ainsi le résultat prévu par l'équation (2.41), la tache fait 50  $\mu\text{m}$  FWHM

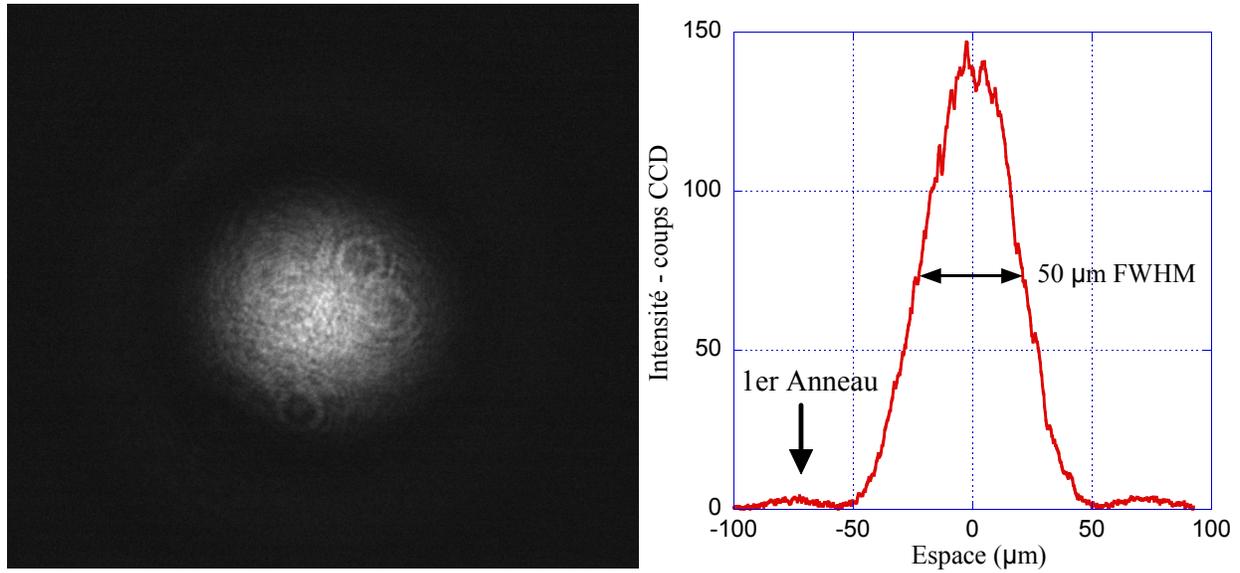


FIGURE 2.26 – Tache focale de la pompe. Gauche : image 2D ; Droite : coupe au centre. La tache mesure  $50\ \mu\text{m}$  FWHM. Les formes circulaires de petites tailles sur l’image 2D sont dûs à des défauts sur les densités optiques présentes devant la caméra.

## 2.5.2 Calcul de la fluence sur cible

L’énergie incidente est mesurée dans l’enceinte, juste devant la cible. Cette énergie est la valeur intégrée sur toute la tache focale. La tache focale est quand à elle assimilable à une tache d’Airy. Elle est constituée d’une tache centrale entourée d’anneaux dont 83.8% de l’énergie totale incidente est comprise dans la tache centrale. On calcule ainsi, pour chaque énergie incidente, la fluence sur cible résolue en chaque point de la tache focale.

## 2.5.3 Mesure d’énergie absorbée

Bien que simple en théorie, la mesure d’énergie est une opération délicate expérimentalement. Il s’agit de mesurer simultanément les énergies incidentes et réfléchies d’une cible afin d’en déduire l’absorption. Le montage utilisé est présenté en figure 2.5. L’utilisation de 2 capteurs est nécessaire, un pour l’énergie incidente, un pour l’énergie réfléchie. Les deux capteurs sont calibrés l’un par rapport à l’autre en remplaçant la cible par un miroir multicouches supposé avoir une réflexion de 100% à la longueur d’onde considérée. Il apparait ici une source d’erreur sur la mesure. Pendant la calibration, comme ce miroir possède une tenue au flux limitée, la lentille de focalisation sur la voie pompe est ôtée et ce faisceau de référence n’emprunte pas exactement le même trajet optique que le faisceau de mesure. Par ailleurs, ce faisceau n’étant pas focalisé sur cible, il ne possède pas le même diamètre que le faisceau de mesure. Dans les premières expériences que nous avons réalisées, les faisceaux arrivaient directement sur le chip d’une photodiode après une éventuelle réflexion sur une lame pris-

matique pour réduire le flux. Les résultats obtenus étaient aberrants et nous en avons conclu qu'il était préférable de ne pas irradier directement le chip de la photodiode mais d'utiliser une sphère intégrante. On s'affranchit ainsi de la différence de répartition spatiale de l'énergie dans les faisceaux de mesure et de référence et la mesure est de meilleure qualité. En effet, la surface interne de la sphère intégrante diffuse la lumière et, suite à de multiples réflexions au cœur de la sphère, permet de garantir une parfaite homogénéisation de la radiation sur la chip de la photodiode. Les sphères intégrantes permettent également de s'affranchir d'un éventuel dépointé des lasers aux cours des mesures.

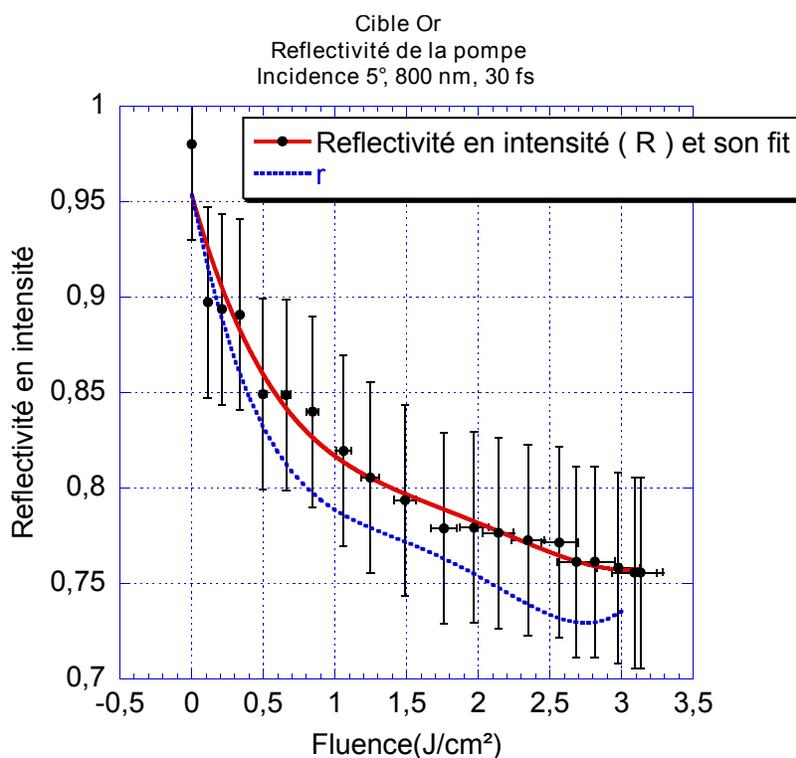


FIGURE 2.27 – Réflectivité en fonction de la fluence incidente mesurée sur une cible en or pour une pompe à 800 nm. La courbe nommée  $r$  est la déconvolution du fit de la réflectivité en intensité mesurée.

En pratique, nous mesurons ainsi le coefficient d'absorption de la cible pour plusieurs fluences incidentes. En réalité, la répartition de l'énergie dans la tache focale de la pompe n'est pas uniforme et la fluence incidente est calculée au centre de la tache focale, là où elle prend sa valeur maximum. Nous mesurons ainsi une absorption moyennée sur toute la tache focale en fonction de la fluence au centre de cette tache. Pour connaître réellement l'absorption en fonction de la fluence incidente, une méthode consisterait à remplacer les photodiodes par des caméras calibrées. En imageant, par un système d'imagerie positionné sur la voie pompe, la zone d'interaction sur une camera CCD, on disposerait alors d'une information 2D

résolue spatialement et le calcul de l'absorption serait possible. Cette méthode nécessiterait effectivement une lentille de bonne qualité (sans aberration à haute fluence) et une caméra supplémentaire ce qui complexifierait lourdement le set-up expérimental et nous ne l'avons pas réalisé. Pour cette raison, nous déconvoluons la mesure faite avec les photodiodes de la manière suivante :

Pour simplifier les notations dans le calcul suivant, il est réalisé en une seule dimension. Il suffit à l'utilisateur de remplacer les intégrales simples par des intégrales double pour un calcul à 2 dimensions.

Soit  $\phi_i(x)$  et  $\phi_r(x)$  respectivement les distributions spatiales des intensités incidentes et réfléchies du faisceau pompe écrites au niveau de la cible. Les énergies incidentes et réfléchies s'écrivent alors :

$$E_i = \int_{-\infty}^{\infty} \phi_i(x) dx \text{ et } E_r = \int_{-\infty}^{\infty} \phi_r(x) dx \quad (2.42)$$

On appelle  $R(E_i)$  la réflectivité mesurée qui, naturellement, dépend de l'énergie incidente. Par définition de  $R$ ,

$$E_r = R(E_i)E_i, \quad (2.43)$$

que l'on réécrit :

$$\int_{-\infty}^{\infty} \phi_r(x) dx = R \left( \int_{-\infty}^{\infty} \phi_i(x) dx \right) \int_{-\infty}^{\infty} \phi_i(x) dx. \quad (2.44)$$

Comme précisé plus haut,  $R$  est la réflectivité en énergie intégrée sur toute la tache focale. On appelle  $r$  la réflectivité non intégrée, i.e. celle l'on recherche. Elle dépend de la fluence sur cible donc indirectement de la dimension spatiale et par définition,

$$\phi_r(x) = r(\phi_i(x)) \phi_i(x). \quad (2.45)$$

En remplaçant, il vient

$$\int_{-\infty}^{\infty} r(\phi_i(x)) \phi_i(x) dx = R \left( \int_{-\infty}^{\infty} \phi_i(x) dx \right) \int_{-\infty}^{\infty} \phi_i(x) dx. \quad (2.46)$$

On appelle  $f_0$  la fluence incidente au maximum de la tache focale, et  $\psi_i(x)$  la distribution spatiale normalisée de l'intensité<sup>9</sup>, soit

$$\phi_i(x) = f_0 \psi_i(x) \quad (2.47)$$

On appelle également  $A$  l'intégrale de la distribution spatiale normalisée de l'intensité incidente.

$$A = \int_{-\infty}^{\infty} \psi_i(x) dx \quad (2.48)$$

---

9.  $\psi_i$  est mesurée en imageant la tache focale (§2.5.1).

d'où

$$\int_{-\infty}^{\infty} \phi_i(x) dx = f_0 A \quad (2.49)$$

En remplaçant dans (2.46), il vient :

$$\int_{-\infty}^{\infty} r(f_0 \psi_i(x)) \psi_i(x) dx = R(f_0 A) A. \quad (2.50)$$

Déconvoluer le système signifie extraire  $r$  de cette équation. Pour ce faire, on écrit  $r$  et  $R$  sous la forme d'un développement en série de Taylor :

$$\begin{aligned} r(f_0 \psi_i(x)) &= \sum_{k=0}^N a_k [f_0 \psi_i(x)]^k, \\ R(f_0 A) &= \sum_{j=0}^N b_j [f_0 A]^j. \end{aligned} \quad (2.51)$$

Les coefficients  $b_i$  seront obtenues en fitant la mesure expérimentale de  $R$  par un polynôme d'ordre  $N$ . En remplaçant dans (2.50), on obtient :

$$\int_{-\infty}^{\infty} \left( \sum_{k=0}^N a_k [f_0 \psi_i(x)]^k \right) \psi_i(x) dx = \left( \sum_{j=0}^N b_j [f_0 A]^j \right) A. \quad (2.52)$$

d'où

$$\int_{-\infty}^{\infty} \left( \sum_{k=0}^N a_k f_0^k \psi_i(x)^{k+1} \right) dx = \sum_{j=0}^N b_j f_0^j A^{j+1}. \quad (2.53)$$

Par linéarité de l'intégration, on sort la somme de l'intégrale :

$$\sum_{k=0}^N a_k \left( \int_{-\infty}^{\infty} \psi_i(x)^{k+1} dx \right) f_0^k = \sum_{j=0}^N b_j A^{j+1} f_0^j. \quad (2.54)$$

Cette relation est une égalité de 2 polynômes de degré  $N$  écrite sur  $f_0$ . Par identification, on obtient ainsi une relation reliant  $a_k$  et  $b_j$  pour  $k = j$

$$a_j = b_j \frac{A^{j+1}}{\int_{-\infty}^{\infty} \psi_i(x)^{j+1} dx} \quad (2.55)$$

$\psi_i(x)$  est mesuré expérimentalement donc  $A$  l'est aussi. De même,  $R(f_0 A) = R(E_i)$  avec  $E_i = f_0 A$  est mesuré lors de la mesure d'absorption, il est connu pour plusieurs  $f_0$  donc les  $b_j$  sont connus. Par l'équation (2.55), on calcule les  $a_j$  qui permettent de connaître  $r$  depuis  $R$ ,  $r$  étant la réflectivité non intégrée sur la tache focale. Comme présenté sur la figure 2.27, comme  $R$  est décroissante, on a  $r < R$ . La réflectivité déconvoluée reste dans les barres d'erreur mais elle reste tout de même plus précise, elle est corrigée d'une erreur systématique. Elle est utilisée pour déduire en chaque point de la cible l'énergie absorbée  $E_{abs}$  par la cible pour une énergie incidente  $E_{inc}$  avec  $E_{abs} = [1 - r(E_{inc})]E_{inc}$ .

### 2.5.4 Synchronisation de la ligne à retard pompe

Comme présenté sur le schéma 2.5, une ligne à retard est positionnée sur la voie pompe de manière à modifier le délai entre la pompe et la sonde. En pratique, il est important de connaître le réglage de la ligne à retard pour lequel pompe et sonde arrivent en même temps sur cible. Grossièrement, ce réglage est dans un premier temps évalué en observant l'apparition du cratère formé par la pompe en utilisant l'imagerie de la sonde. La dynamique de formation du cratère est plus longue que notre résolution temporelle donc cette méthode est approximative. Pour affiner ce réglage, ensuite, on tire à haute fluence ( $\simeq 3\text{J}/\text{cm}^2$ ) avec la pompe sur une zone de verre entre le dépôt métallique et le bord de la cible. En effet, la population électronique en bande de conduction dans un diélectrique augmente très rapidement pendant le dépôt d'énergie et la sonde se réfléchit plus (cette technique est particulièrement utilisée pour les miroirs plasma). On cherche ainsi le réglage de la ligne à retard de la pompe correspondant à l'augmentation brutale de réflectivité sur la voie sonde et les deux faisceaux sont synchronisés à plus ou moins 50 fs.

## Interprétation des mesures FDI

Suite à l'irradiation du laser de pompe, les propriétés de la matière chauffée sont modifiées et sa caractérisation se divise en 2 catégories d'études distinctes :

- Les propriétés diélectriques,
- Les propriétés hydrodynamiques.

Dans ce chapitre, nous proposons une méthode basée sur les équations de Fresnel visant à différencier les contributions des propriétés diélectriques et hydrodynamiques sur la phase et la réflectivité mesurée afin de calculer l'indice optique du matériau, caractériser la vitesse d'expansion et éventuellement d'estimer la longueur de gradient de densité  $L = n_e / \nabla n_e$  autour de la densité critique.

### 3.1 Méthodologie pour retrouver les réflectivités complexes absolues

Dans l'ensemble du manuscrit, les appellations "cible froide" et "cible chaude" correspondent à la cible avant et après interaction avec le laser de pompe. Contrairement aux mesures d'ellipsométrie par exemple, les mesures faites en FDI sont toutes relatives par rapport à la cible froide. Par définition, lors d'un tir de référence, la phase mesurée est nulle et la réflectivité relative vaut 1 donc il n'est pas possible de calculer la réflectivité de la cible froide. Donc, afin de calculer l'indice optique de la matière chauffée en utilisant les mesures expérimentales, il nous faudra utiliser les valeurs froides. Nous les trouverons dans la littérature ou nous les mesurerons par ellipsométrie sur nos propres échantillons.

Par ailleurs, pour connaître les réflectivités complexes de la cible chaude à partir des réflec-

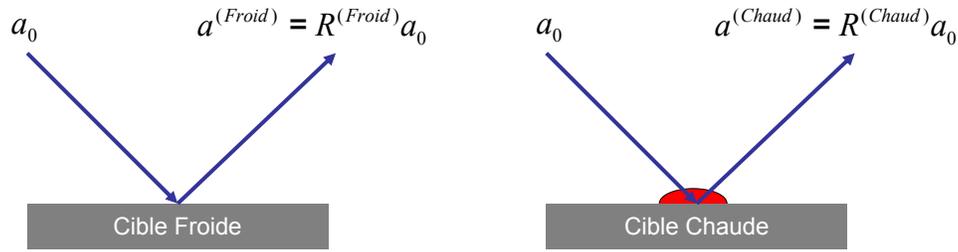


FIGURE 3.1 – Modification de l'amplitude de l'onde sonde après réflexion sur une cible froide puis chaude.

tivités froides et des mesures FDI, il est important de ne pas commettre d'erreur de signe, notamment sur les phases. Elles se calculent de la manière suivante. Soit une onde d'amplitude  $a_0$  en réflexion sur une cible (voir schéma 3.1). On appelle :

$R^{(Froid)} = r^{(Froid)} e^{i\phi^{(Froid)}}$  Le coefficient de réflexion lorsque l'onde est réfléchi sur une cible avant l'interaction. Ce coefficient de réflexion se calcule grâce aux équations de Fresnel depuis la valeur d'indice optique.

$R^{(Chaud)} = r^{(Chaud)} e^{i\phi^{(Chaud)}}$  Le coefficient de réflexion sur cible après interaction.

$R^{(FDI)} = r^{(FDI)} e^{i\phi^{(FDI)}}$  Le coefficient de réflexion mesuré expérimentalement.

La mesure expérimentale nous donne accès à  $R^{(FDI)}$  qui, par définition, est la modification relative de la réflectivité de la deuxième impulsion par rapport à la première. Comme, en mode absolu, la première impulsion se réfléchit sur cible froide et la deuxième se réfléchit sur cible chaude, il s'écrit :

$$R^{(FDI)} = \frac{R^{(Chaud)}}{R^{(Froid)}} \quad (3.1)$$

En isolant module et argument, il vient le système d'équation suivant qui permet de calculer les valeurs absolues :

$$\begin{cases} r^{(Chaud)} &= r^{(Froid)} r^{(FDI)} \\ \phi^{(Chaud)} &= \phi^{(Froid)} + \phi^{(FDI)} \end{cases} \quad (3.2)$$

Dans les conventions que nous nous sommes fixées, le champ électrique s'écrit  $E = E_0 e^{i(\omega t - kx)}$ . Ce choix nous invite à écrire l'indice optique  $N = n - i\kappa$  avec  $(n, \kappa) \in \mathfrak{R}_+^2$ . Le signe de la partie imaginaire de  $N$  est important ici car il va conditionner le signe du déphasage à l'interface par le biais des équations de Fresnel qui elles, sont indépendantes de la convention. En pratique, raccorder ces conventions aux signes des phases expérimentales demande un calcul

très rigoureux qui prend en compte de nombreux paramètres comme :

- L'ordre (-1 ou +1) dans le lequel est positionné le réseau. Le sens de la dispersion en dépend.
- La position de la caméra. Le fait de la retourner de 180° inverse le signe des phases.
- Les conventions utilisées dans les transformées de Fourier.
- Le choix du pic de Dirac à isoler : Avant le fenêtrage, deux pics de Dirac sont présents. Isoler l'un ou l'autre inverse le signe des phases car le fenêtrage sélectionne une composante de Fourier ou sa composante conjuguée.

Un moyen sûr pour vérifier l'exactitude du signe des phases qui en résulte consiste à utiliser l'effet Doppler car nous savons a priori dans quel sens il doit évoluer. En écrivant de la même manière le champ électrique, c'est à dire sous la forme  $E = E_0 e^{i(\omega t - kx)}$ , la phase décroît le long de sa propagation dans le sens des  $x$  positif. Si le chemin optique d'une impulsion sonde est raccourci à cause d'un déplacement de l'interface vers le vide, ayant parcouru une distance plus courte, la valeur de la phase de cette impulsion sera plus grande que si elle s'était réfléchi sur la cible froide. Par ce raisonnement, on en déduit que le signe de la phase Doppler est positif dans la convention choisie. En pratique, il est plus robuste de considérer la dérivée temporelle de la phase. Si l'interface se déplace à une certaine vitesse vers le vide, la dérivée de la phase sera positive.

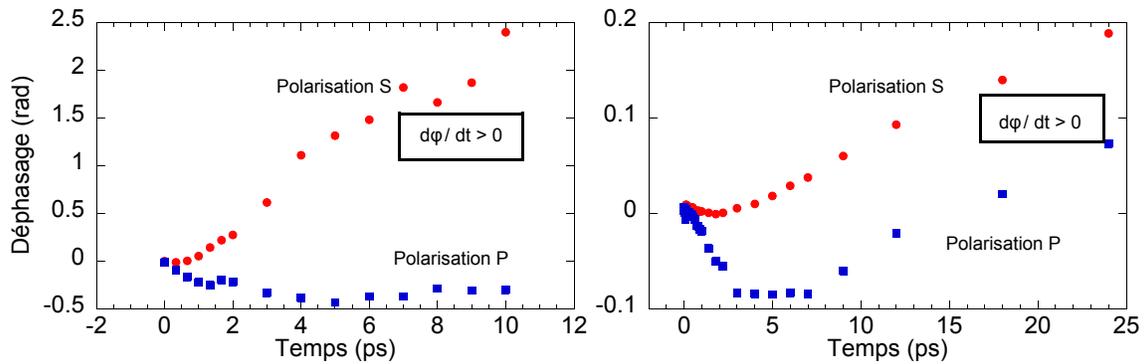


FIGURE 3.2 – Évolution des déphasages en fonction du temps sur des cibles d'Al. Gauche : 7 J/cm<sup>2</sup>, Droite : 1 J/cm<sup>2</sup>. Les variations temporelles des phases en polarisation S sont positives, elles sont la signature de l'effet Doppler.

Lors d'expériences faites à haute fluence (plusieurs J/cm<sup>2</sup>), quelques picosecondes après chauffage, la phase en polarisation S est gouvernée en majorité par l'effet Doppler [25]. Or, le couple formé par notre set-up expérimental et notre programme informatique de calcul de phase à partir des figures expérimentales donne des variations de phases positives comme présentées sur la figure 3.2. Nous en déduisons que les paramètres énoncés ci-dessus ont été correctement

pris en compte.

Un schéma récapitulatif de la méthode est présenté en figure 3.3.

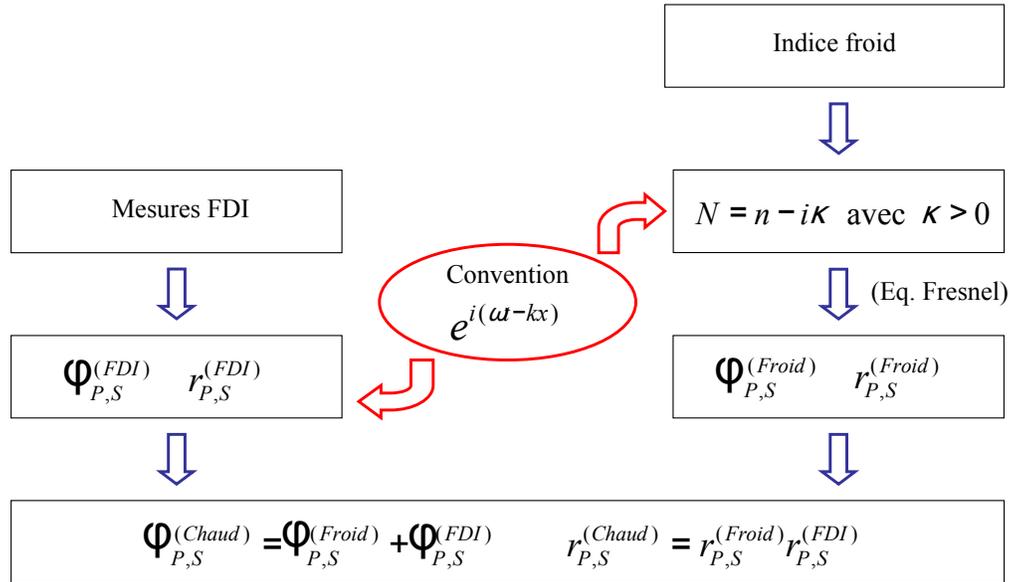


FIGURE 3.3 – Récapitulatif de la procédure pour obtenir les valeurs des phases et réflexivités absolues (chaudes).

## 3.2 Séparation des contributions diélectriques et hydrodynamiques

La matière à l'état solide possède une certaine cohésion. On parle d'énergie de cohésion, l'énergie nécessaire à apporter à un système pour le séparer en ses différents constituants. Après (et éventuellement pendant) le dépôt d'énergie par la pompe, la matière chauffée peut recevoir suffisamment d'énergie pour perdre sa cohésion. Elle se détend vers le vide sous forme liquide, gazeuse ou plasma. Dans le cas précis d'un laser de sonde à  $45^\circ$ , nous allons définir un critère basé sur les équations de Fresnel qui va nous permettre, lorsqu'il s'applique, de séparer les contributions diélectrique et hydrodynamique à la phase et à la réflectivité d'une part et d'autre part, de connaître le régime d'expansion dans lequel la matière chauffée se trouve. Nous verrons lors de l'exposition des résultats expérimentaux que ce critère ne permet pas d'expliquer en détail toutes les situations rencontrées. Il constitue une première approche idéale, fixe les ordres de grandeurs et, dans certains cas, ne peut donner que des

informations qualitatives.

### 3.2.1 Calcul d'indice optique et définition d'un critère

La première étape consiste à décrire la réflexion de l'onde sur un dioptre (voir figure 3.4). L'onde incidente se propage dans le vide et rencontre un milieu d'indice optique  $N$ . L'onde se sépare en deux ondes, une réfléchiée  $E_r$  et une transmise  $E_t$ . Soit  $E_i$  l'amplitude complexe du champ électrique de l'onde incidente. Après réflexion, l'onde est modifiée en phase et en amplitude, son champ électrique s'écrit

$$E_r = RE_i = r E_i e^{i\phi} \quad (3.3)$$

où  $r$  est la réflectivité et  $\phi$  le déphasage à l'interface. Dans l'ensemble du manuscrit,  $R$  désigne la réflectivité complexe et  $r$  la réflectivité en champ, son module.

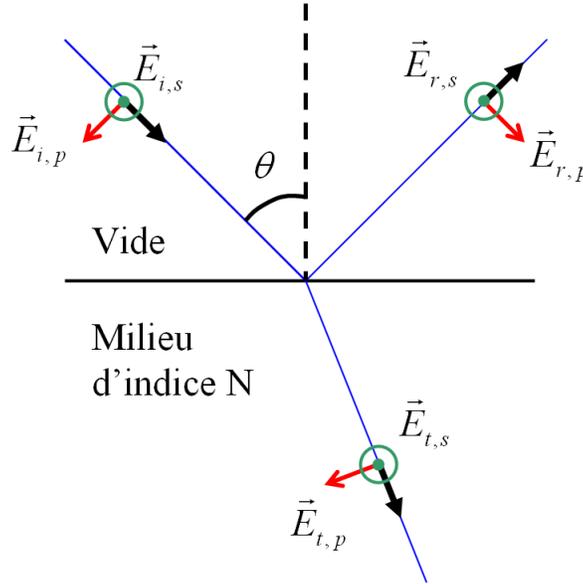


FIGURE 3.4 – Réfraction et réflexion d'une onde en polarisation  $S$  et  $P$  sur un milieu d'indice  $N$ . Les indices  $i, r$  et  $t$  signifient respectivement les ondes incidentes, réfléchies et transmises.

En écrivant la continuité des composantes tangentielles des champs électriques et magnétiques à l'interface, les formules de Fresnel s'écrivent :

$$R_s = \frac{\cos \theta - \sqrt{N^2 - \sin^2 \theta}}{\cos \theta + \sqrt{N^2 - \sin^2 \theta}} \quad R_p = \frac{N^2 \cos \theta - \sqrt{N^2 - \sin^2 \theta}}{N^2 \cos \theta + \sqrt{N^2 - \sin^2 \theta}}, \quad (3.4)$$

avec  $\theta$  l'angle d'incidence,  $R_s$  et  $R_p$  respectivement les réflectivités complexes en polarisation

S et P. Ces relations permettent de calculer le coefficient de réflexion connaissant l'indice optique. Nous cherchons à inverser ces relations de manière à calculer l'indice optique d'un matériau chauffé depuis les mesures des réflectivités. Connaissant l'angle d'incidence, le système est formé de 2 équations pour une seule inconnue  $N$ , il y a redondance d'information donc chaque façon de calculer l'indice utilisera des informations différentes. Grâce à l'équation de Fresnel relative à la polarisation S, l'indice optique est facilement calculé, il s'écrit :

$$N^2 = \Omega_s^2 \cos^2 \theta + \sin^2 \theta \quad \text{avec} \quad \Omega_{s,p} = \frac{1 - R_{s,p}}{1 + R_{s,p}} \quad (3.5)$$

Par ailleurs, en écrivant chaque équation sous la forme  $\Omega_s = \sqrt{N^2 - \sin^2 \theta} / \cos \theta$  et  $\Omega_p = \sqrt{N^2 - \sin^2 \theta} / N^2 \cos \theta$ , une autre écriture de l'indice devient :

$$N^2 = \frac{\Omega_s}{\Omega_p} \quad (3.6)$$

Cette équation ne fait pas appel à l'angle d'incidence. Largement utilisé dans la mesure d'indice optique par ellipsométrie, une autre manière consiste à mesurer expérimentalement le rapport  $\rho = R_p/R_s$ . L'équation s'écrit alors

$$N^2 = \sin^2 \theta \left[ 1 + \left( \frac{1 - \rho}{1 + \rho} \right)^2 \tan^2 \theta \right] \quad (3.7)$$

En égalisant les parties de droites des équations (3.5) et (3.7), on obtient une relation indépendante de l'indice optique qui relie les réflectivités complexes S et P. Elle s'écrit :

$$\tan^2 \theta = \pm \frac{1 - R_s R_s + R_p}{1 + R_s R_s - R_p} \quad (3.8)$$

Grâce à l'équation (3.5), le calcul d'indice optique est possible avec la mesure unique de  $R_s$ . En revanche, mesurer simultanément  $R_s$  et  $R_p$  permet de s'assurer que ces 2 quantités vérifient l'équation (3.8). Elles sont alors compatibles entre elles et le calcul d'indice optique a un sens. En d'autres mots, si l'équation (3.8) n'est pas satisfaite, alors les calculs d'indices optiques par les équations (3.5), (3.6) et (3.7) donneront des résultats différents et erronés.

Issue des équations de Fresnel, l'équation (3.8) est sujette aux mêmes hypothèses que celles de Fresnel c'est à dire un milieu homogène semi infini avec une interface raide. Lors d'une mesure expérimentale de réflectivité, si le milieu mesuré est suffisamment excité, l'énergie déposée modifie l'interface entre le vide et le milieu. Si l'interface est fortement modifiée, les hypothèses des équations de Fresnel pourraient ne plus être applicables et l'équation (3.8) ne serait pas satisfaite. En effet, cette situation arrive dans la majeure partie des cas. Néanmoins, expérimentalement, notamment lors des mesures effectuées dans les temps courts  $\lesssim 1$  ps, l'équation (3.8) peut être vérifiée pour certaines conditions d'énergie incidente. Nous

sommes alors en mesure de penser que les hypothèses des équations de Fresnel sont également satisfaites. En pratique, être dans une situation où l'équation (3.8) est satisfaite expérimentalement alors que les hypothèses de Fresnel ne le sont pas pourrait apparaître uniquement dans une situation très peu probable dans laquelle il y aurait une compensation parfaite entre différents mécanismes. Pour appuyer cette thèse, nous résolvons numériquement dans la suite de ce chapitre les équations d'Helmholtz dans le cas d'un plasma en expansion.

Dans le cas particulier d'une incidence à  $45^\circ$ , la relation (3.8) se réduit à

$$\boxed{R_p = (R_s)^2 \quad \text{si } \theta = \pi/4.} \quad (3.9)$$

En égalisant module et argument, on obtient le système d'équation suivant :

$$\begin{cases} r_p = r_s^2 \\ \phi_p = 2\phi_s, \end{cases} \quad (3.10)$$

la phase étant définie à  $\pm 2\pi$ . On définit alors les trois quantités :

$$\boxed{\begin{aligned} \beta_r &= r_p/r_s^2 \\ \beta_\phi &= 2\phi_s - \phi_p \\ \beta_\epsilon &= \phi_p - \phi_s \end{aligned}} \quad (3.11)$$

Trivialement, quand les équations de Fresnel (et leurs hypothèses) s'appliquent alors  $\beta_r = 1$  et  $\beta_\phi = 0$ . Nous verrons dans la suite que mesurer expérimentalement ces 2 quantités donne des informations sur la forme de l'interface entre le milieu et le vide. Pour ce faire, on s'intéresse dans la suite à différents scénarios possibles d'évolution de l'interface suite à l'excitation par le laser de pompe. Pour chaque cas, nous discuterons les valeurs de  $\beta_r$  et  $\beta_\phi$

### 3.2.2 Situation isochore

Situation la plus simple qui apparaît notamment lors d'un chauffage à faible fluence (voir figure 3.5). L'énergie, déposée sur les électrons, ne s'est pas transférée de façon notable au réseau ionique. Soit la matière conserve sa cohésion ou soit la mesure est réalisée suffisamment tôt pour que l'expansion n'ait pas eu le temps de se mettre en place. L'énergie absorbée modifie la structure interne du matériau et l'indice optique est modifié.

Comme l'interface reste raide, les relations entre phases et réflectivités mesurées s'écrivent :

$$\begin{cases} r_p = r_s^2 \\ \phi_p = 2\phi_s \end{cases} \quad \text{avec} \quad \begin{cases} r = r^{(Fr)} \\ \phi = \phi^{(Fr)} \end{cases} \quad (3.12)$$

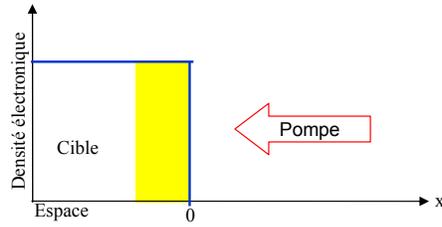


FIGURE 3.5 – Schéma d'une situation isochore, la fonction diélectrique de la matière chauffée est modifiée mais la matière ne se détend pas.

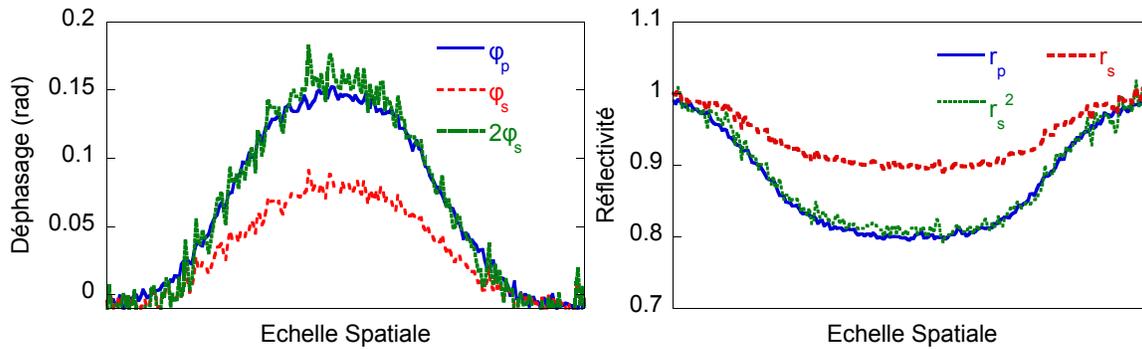


FIGURE 3.6 – Illustration expérimentale de la situation isochore. L'équation 3.9 est vérifiée.

Lors d'expériences réalisées sur des métaux nobles, très rapidement la densité électronique en bande de conduction augmente, ce qui a pour effet de modifier fortement les valeurs des phases et des réflectivités. À titre d'exemple, sur la figure 3.6 sont présentés les résultats d'un tir sur du cuivre. À  $1 \text{ J/cm}^2$  alors que pompe et sonde sont à  $400 \text{ nm}$ , la mesure est faite avant que la matière ne se détende ( $t = 400 \text{ fs}$ ).

En règle générale, l'interprétation des mesures issues du FDI passent par l'utilisation de modèle analytique ou numérique mais la mesure en elle même, particulièrement sur la phase, est dénuée d'unité et sa valeur ne possède un sens physique qu'après une interprétation via un modèle théorique. Cherchant à éviter les erreurs d'analyse ou les artefacts expérimentaux, on étudie ici la contribution Fresnel afin d'obtenir des ordres de grandeurs en termes de phase et de réflectivité potentiellement mesurables pour mieux comprendre les variations mesurées. Après l'excitation du laser de pompe, la fonction diélectrique de la cible est modifiée. Sans évoquer ici les conséquences des transitions interbandes, on se propose d'utiliser un simple modèle de Drude pour calculer les phases et les réflectivités en réponse d'une onde en réflexion sur une cible en or. Les résultats qualitatifs seront transposables à d'autre métaux. La fonction diélectrique s'écrit :

$$\epsilon = N^2 = 1 - \frac{\tilde{n}_e}{1 - i\tilde{\nu}}, \text{ avec } \begin{cases} \tilde{n}_e = n_e/n_c \\ \tilde{\nu} = \nu/\omega \end{cases} \quad (3.13)$$

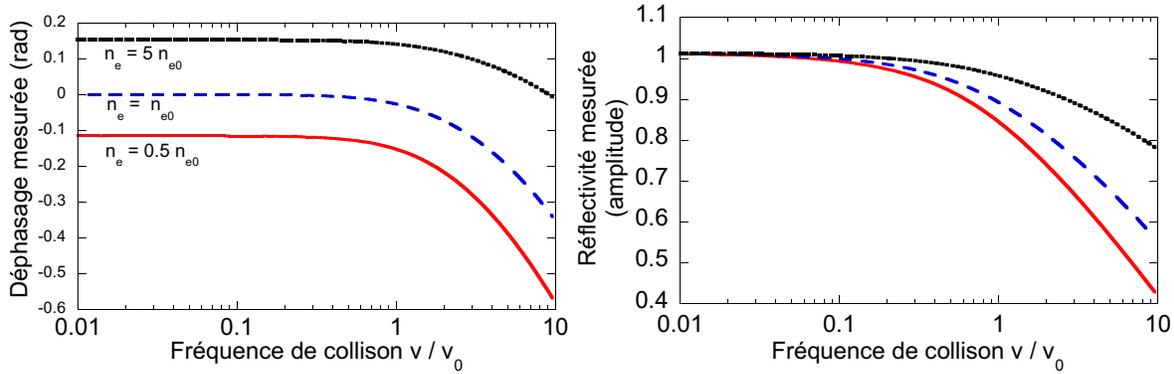


FIGURE 3.7 – Évolution théorique de la phase et de la réflectivité prédites par le modèle de Drude sur une cible en or pour une onde en polarisation S à  $45^\circ$  en fonction de la densité électronique et de la fréquence de collision.

Elle varie en fonction de la densité électronique et de la fréquence de collision. Selon les métaux,  $\tilde{n}_e$  varie entre 10 et 100 à froid pour des lasers optiques. Connaissant la fonction diélectrique de l’or à froid, par le système d’équation (1.42), nous calculons les coefficients  $\tilde{n}_{e0}$  et  $\tilde{\nu}_0$  représentant la population électronique en bande de conduction et les collisions associées pour le solide froid, c’est à dire avant interaction avec le laser de pompe. Nous obtenons  $\tilde{n}_{e0} = 26.5$  et  $\tilde{\nu}_0 = 0.1$ . Ces valeurs sont utilisées pour normaliser les graphiques de la figure 3.7. On étudie alors l’évolution du déphasage et de la réflectivité lorsque la cible subit une modification de la valeur de sa densité électronique et de sa fréquence de collision. Après calcul de la fonction diélectrique, la réflectivité complexe est évaluée par le biais des équations de Fresnel. Comme présenté sur la figure 3.7, le déphasage va évoluer de manière croissante avec la densité électronique et décroissante quand les collisions augmentent. Quant à la réflectivité, elle décroît quand la fréquence de collision augmente et augmente quand la densité électronique augmente. Ceci se comprend intuitivement puisqu’un conducteur se rapproche d’un conducteur idéal parfaitement réfléchissant quand  $n_e$  augmente et  $\nu$  diminue.

### 3.2.3 Expansion sur-dense

Cette situation correspond au cas où la matière chauffée se détend vers le vide mais le gradient en face avant reste raide (voir figure 3.8). Une expansion de type liquide répond à cette situation. La densité de la matière en détente étant plus faible que celle du solide, une onde de raréfaction se propage vers l’intérieur de la cible.

L’onde électromagnétique est évanescence sur une distance correspondant à l’épaisseur de peau et les signaux répondent à la fonction diélectrique de la matière en expansion. En revanche, les phases sont largement influencées par l’effet Doppler, conséquence de la réflexion

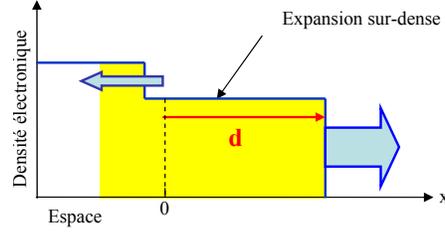


FIGURE 3.8 – Schéma d'une expansion de type sur-dense

d'une onde sur une interface en mouvement. Soit  $\omega_0$  la pulsation de l'onde,  $k_0$  son vecteur d'onde et  $v$  la vitesse de l'interface. Cette onde parcourt une distance  $l/2$ , se réfléchit à incidence normale sur une surface, parcourt à nouveau une distance  $l/2$  et arrive dans un détecteur. Sa phase est alors égale à  $\phi(t) = \omega_0 t - k_0 l$ . Elle se réfléchit dorénavant sur une interface en mouvement, son chemin optique se raccourcit et sa phase au niveau du détecteur s'écrit  $\phi(t) = \omega_0 t - k_0(l - 2vt)$  qu'il est possible d'écrire de deux manières différentes :

- $\phi(t) = (\omega_0 + 2k_0 v)t - k_0 l$ , la pulsation de l'onde est modifiée par réflexion sur la surface en mouvement. L'onde acquiert de l'énergie si l'interface se déplace vers la source et après réflexion la pulsation devient  $\omega = \omega_0 + 2k_0 v$  pour une réflexion à incidence normale. On parle alors de blue-shift.
- $\phi(t) = \omega_0 t - k_0 l + \phi^{(D)}(t)$  avec  $\phi^{(D)}(t) = 2k_0 vt$  la phase Doppler.

Dans le cas d'une incidence oblique d'angle  $\theta$  la phase Doppler devient  $\phi^{(D)}(t) = 2k_0 vt \cos \theta$  que l'on réécrit :

$$\frac{d\phi^{(D)}}{dt} = \frac{4\pi}{\lambda} \cos \theta v \quad (3.14)$$

En pratique, les impulsions lasers sont très courtes devant les temps caractéristiques d'expansion hydrodynamique ( $30 \text{ fs} \ll \sim 1 \text{ ps}$ ) donc la position de l'interface évolue peu durant le passage de l'impulsion sonde. Il est plus commode de réécrire la phase Doppler en fonction de  $d$ , le déplacement de l'interface :

$$\phi^{(D)} = \frac{4\pi}{\lambda} \cos \theta d \quad (3.15)$$

On remarque que la phase Doppler est indépendante de la polarisation soit  $\phi_s^{(D)} = \phi_p^{(D)}$ . Alors qu'une composante due à l'effet Doppler s'ajoute en phase, la réflectivité est gouvernée par les équations de Fresnel. Les relations entre phases et réflectivités mesurées s'écrivent alors :

$$\begin{cases} r_p = r_s^2 \\ \phi_s = \phi_s^{(Fr)} + \phi^{(D)} \\ \phi_p = \phi_p^{(Fr)} + \phi^{(D)} \end{cases} \text{ avec } \begin{cases} r = r^{(Fr)} \\ \phi_p^{(Fr)} = 2\phi_s^{(Fr)} \end{cases} \quad (3.16)$$

Il est intéressant de noter que dans ce cas les phases Doppler et Fresnel se calculent de manière analytique à partir des phases mesurées :

$$\begin{cases} \phi^{(D)} = \beta_\phi = 2\phi_s - \phi_p \\ \phi_s^{(Fr)} = \beta_\epsilon = \phi_p - \phi_s \end{cases} \quad (3.17)$$

Un exemple expérimental est exposé ici en figure 3.9 sur une cible de nickel à une fluence de  $0.3 \text{ J/cm}^2$  avec une pompe à  $400 \text{ nm}$  et une sonde à  $800 \text{ nm}$ . L'image est prise à  $t = 6 \text{ ps}$ , la matière a le temps de se détendre mais sous forme sur-dense car le rapport  $r_p/r_s^2$  est toujours proche de 1.

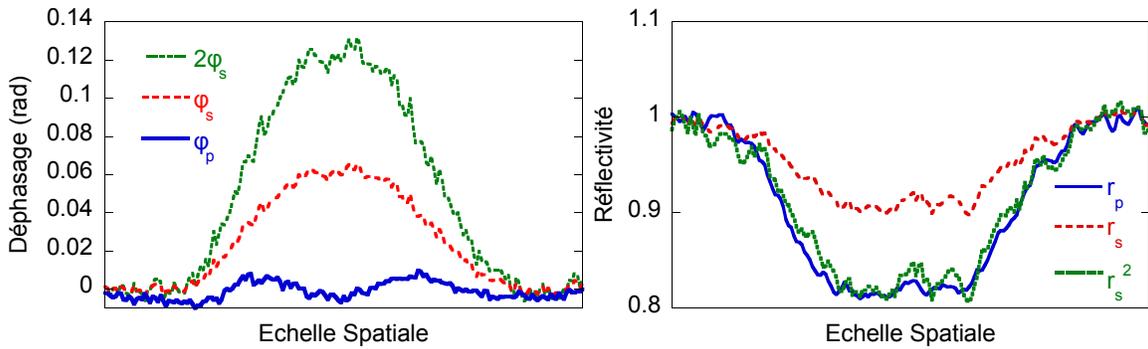


FIGURE 3.9 – Illustration expérimentale de la situation d'expansion sur-dense. L'équation 3.9 est vérifiée en réflectivité uniquement.

### 3.2.4 Expansion sous dense

La manière la plus simple pour étudier la WDM est de chercher expérimentalement à sonder la matière lorsque celle-ci conserve une interface raide, c'est à dire se placer dans les schémas nommés "situation isochore" et "expansion surdense". On cherche ici, par la résolution des équations d'Helmholtz dans le cas d'une détente plasma et par des arguments qualitatifs pour une expansion gazeuse, à connaître l'influence d'une détente sous dense sur les signaux mesurables. Pour la détente plasma, la méthode nous permettra d'estimer la longueur de gradient à la densité critique et éventuellement d'appliquer une correction aux signaux expérimentaux pour compenser les effets des gradients.

Dans un solide en phase condensée, à température nulle, la pression totale  $P$  est nulle. Elle s'écrit comme la somme des pressions ionique  $P_i$ , électronique  $P_e$  et de cohésion  $P_c$  telle que  $P = P_e + P_i + P_c = 0$ . Très simplement, si la somme des pressions ionique et électronique devient supérieure à  $|P_c|$ , la matière perd sa cohésion et se détend sous forme d'un gaz neutre ou d'un plasma. Le gradient en face avant perd sa raideur donc les hypothèses des équations de Fresnel peuvent ne plus être applicables. D'une manière générale, une expansion sous

dense se reconnaît expérimentalement car elle répond à  $r_p \neq r_s^2$ .

### 3.2.4.1 Expansion plasma

Dans les premiers instants qui suivent le chauffage laser, on s'attend à avoir un plasma en détente. Le dépôt laser s'effectue principalement sur les électrons, pression électronique et température électronique augmentent. Cette augmentation de la pression est à l'origine de l'expansion hydrodynamique. Si la pression électronique est supérieure à la pression de cohésion, les ions pourront se mouvoir librement. Les électrons se détachent de l'interface et tirent avec eux les ions vers le vide. La densité électronique évolue selon un profil spatial qui peut, dans le cas d'une détente isotherme, être décrit par une exponentielle décroissante de la cible vers le vide. Le profil est caractérisé par sa longueur de gradient  $L = n_e / \nabla n_e$  (voir figure 3.10).

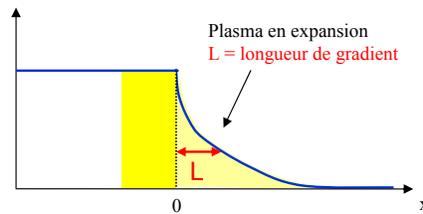


FIGURE 3.10 – Schéma de la situation de type détente plasma.

Comme n'y a pas de relation analytique pour décrire les phases et les réflectivités, dans ce cas là, nous prendrons les notations suivantes :

$$\begin{cases} r_{s,p} &= r_{s,p}^{(\nabla)} \\ \phi_{s,p} &= \phi_{s,p}^{(\nabla)} \end{cases} \quad (3.18)$$

Phases et réflectivités ne sont plus gouvernées par les équations de Fresnel. Le déphasage et l'intensité de l'onde sonde réfléchi résultent de plusieurs processus couplés. Nous trouverons :

- La propagation au travers du plasma sous dense jusqu'au point de rebroussement à la densité  $n_e = n_c \cos^2 \theta$ .
- Le point de rebroussement de l'onde se déplace au cours du temps. Cet effet est comparable à l'effet Doppler.
- L'onde pénètre au delà du point de rebroussement sur une distance de l'ordre de la profondeur de peau. Les caractéristiques de l'onde réfléchi dépendent alors de  $\epsilon(x)$  au delà du point de rebroussement.

– S'ajoute l'effet de l'absorption résonante en polarisation P.

L'ensemble de ces contributions est résumé sous la forme de la phase et de la réflectivité "gradient" notées  $\phi^{(\nabla)}$  et  $r^{(\nabla)}$ . Leurs évaluations passent par la résolution des équations d'Helmholtz [49] :

$$\frac{\partial^2 E}{\partial x^2} + k_0^2(\epsilon^2 - \sin^2 \theta)E = 0 \quad (3.19)$$

$$\frac{\partial^2 B}{\partial x^2} - \frac{1}{\epsilon} \frac{\partial \epsilon}{\partial x} \frac{\partial B}{\partial x} + k_0^2(\epsilon^2 - \sin^2 \theta)B = 0,$$

écrites respectivement pour la polarisation S puis P.

Chaque point du plasma est caractérisé par la fonction diélectrique  $\epsilon(x)$ . Écrite sous la forme de modèle de Drude, elle dépend de la température et du développement hydrodynamique du système par l'intermédiaire de la fréquence de collision et de la densité électronique.

$$\epsilon(x) = 1 - \frac{\tilde{n}_e(x)}{1 - i\tilde{\nu}(x)} \quad (3.20)$$

Le calcul numérique qui suit est réalisé pour une cible de cuivre pour une sonde à 800 nm sachant que les ordres de grandeurs seront transposables à d'autres métaux. Connaissant la valeur froide de la fonction diélectrique du cuivre, par le système d'équation (1.42), nous calculons les coefficients  $n_{eo}$  et  $\nu_o$  représentant la population électronique en bande de conduction et les collisions associées avant interaction avec le laser de pompe. Nous obtenons<sup>1</sup> ainsi  $n_{eo} = 4.6 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}$  et  $\nu_o = 0.1 \omega$ . Ensuite, on construit le profil de fonction diélectrique le long de l'axe  $x$  depuis  $n_e(x)$  et  $\nu(x)$ . Supposant une détente de forme exponentielle décroissante, l'expansion est décrite par :

$$n_e(x) = \begin{cases} \alpha_{ne} n_{eo} e^{x/L} & x < 0 \\ \alpha_{ne} n_{eo} & x \geq 0 \end{cases} \quad (3.21)$$

et  $\nu(x) = \alpha_\nu \nu_o [n_e(x) / \alpha_{ne} n_{eo}]$ , où  $L = n_e / \nabla n_e$  est la longueur de gradient,  $\alpha_{ne}$  et  $\alpha_\nu$  sont des coefficients modélisant la modification des propriétés de la matière après l'excitation laser. Ils sont choisis de manière à simuler une augmentation de la densité électronique (excitation d'électrons de la bande  $d$  vers la bande de conduction), une diminution liée à une éventuelle détente sous forme liquide ainsi qu'une modification de la fréquence de collision. La simulation vise à calculer les réflectivités en fonction de la longueur de gradient  $L/\lambda$  pour plusieurs jeux de paramètre  $\alpha_{ne}$  et  $\alpha_\nu$ . Elle se déroule de la manière suivante :

---

1. Remarquons ici que le modèle de Drude écrit sous la forme de l'équation (3.20) ne permet pas dans l'absolu de recalculer la valeur de la population électronique en bande de conduction correspondant à l'unique électron de valence. La forme  $\epsilon = \epsilon_\infty - f_c \tilde{n}_e / (1 - i\tilde{\nu})$  doit être utilisée pour retrouver ce résultat mais par souci de simplicité, la forme utilisée dans le calcul est plus appropriée.

1. Nous fixons  $\alpha_{ne}$  et  $\alpha_\nu$ .
2. Calcul de  $R_p$  et  $R_s$  en fonction de  $L/\lambda$  par résolution des équations d'Helmholtz.
3. Calcul de  $\beta_\phi$  et  $\beta_r$ .
4. Nous changeons les valeurs de  $\alpha_{ne}$  et  $\alpha_\nu$ .
5. Ré-itération du calcul de  $R_p$  et  $R_s$  en fonction de  $L/\lambda$
6. etc.

Le tout est réalisé avec un angle d'incidence de  $45^\circ$ . Le résultat est présenté sur la figure 3.11.

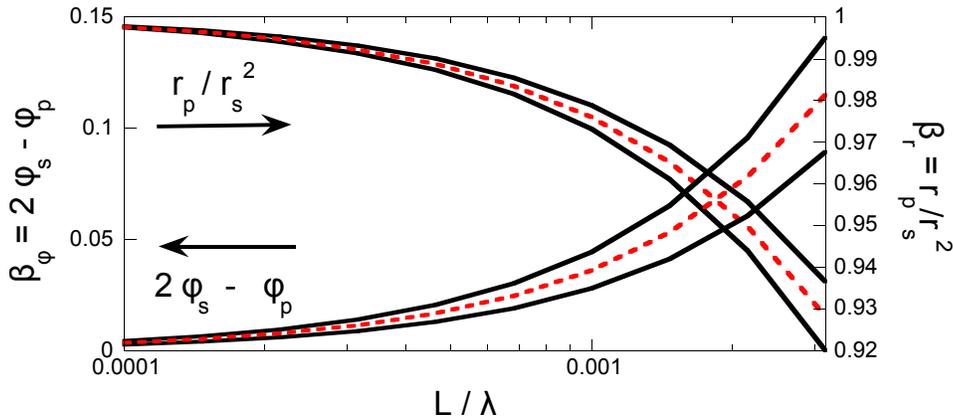


FIGURE 3.11 – Calcul numérique issu de la résolution des équations d'Helmholtz pour une sonde à 800 nm en incidence oblique de  $45^\circ$  sur une cible en cuivre. Sont représentés  $\beta_r = r_p/r_s^2$  et  $\beta_\phi = 2\phi_s - \phi_p$  en fonction de la longueur de gradient  $L/\lambda$ . Les calculs sont effectués pour  $\alpha_{ne}$  variant de 0.5 à 1.5 et pour  $\alpha_\nu$  variant de 0.3 à 10. Les résultats de chaque calcul de  $R_p$  et  $R_s$  en fonction de  $L/\lambda$  correspondant à un jeu de paramètre  $(\alpha_{ne}, \alpha_\nu)$  unique sont deux courbes  $\beta_r(L/\lambda)$  et  $\beta_\phi(L/\lambda)$  comprises entre les deux courbes noires en phase et en réflectivité. Les courbes en pointillés rouges sont les moyennes des simulations.

Dans la limite des gradients très raides  $L < 10^{-4}\lambda$ , pour toutes valeurs de  $\alpha_{ne}$  et  $\alpha_\nu$  les réflectivités mesurées sont en accord avec les équations de Fresnel. Naturellement, les quantités  $\beta_\phi$  et  $\beta_r$  sont respectivement égales à 0 et 1. Au contraire, dès que  $L > 10^{-3}\lambda$ ,  $\beta_\phi > 0.05$  rad et  $\beta_r < 0.97$  donc de faibles longueurs de gradient sont détectables avec un diagnostic interférométrique. Le diagnostic FDI est donc extrêmement sensible à la détente. Quelles que soient les valeurs des paramètres  $\alpha_{ne}$  et  $\alpha_\nu$ , les mesures  $\beta_\phi$  et  $\beta_r$  montrent le même comportement :

- $\beta_\phi(L/\lambda)$  est croissante  $\geq 0 \forall L/\lambda$
- $\beta_r(L/\lambda)$  est décroissante  $\leq 1 \forall L/\lambda$

Par ailleurs, quelles que soient les valeurs de  $\alpha_{ne}$  et  $\alpha_\nu$ , les mesures de  $\beta_r(L/\lambda)$  et  $\beta_\phi(L/\lambda)$  sont comprises entre les deux courbes noires de la figure 3.11. Pour cette raison, on en déduit en première approximation que  $\beta_r$  et  $\beta_\phi$  ne dépendent que de  $L/\lambda$ . Nous calculons ensuite les équations des courbes en pointillés rouges correspondant à une valeur moyenne. Ces courbes sont notés  $\beta_r^{(\nabla)}(L/\lambda)$  et  $\beta_\phi^{(\nabla)}(L/\lambda)$ . Notons que, dans le cas d'une détente de type surdense possédant une interface type plasma, comme présenté sur la figure 3.12,  $\beta_\phi$  est sensible à l'effet Doppler. Non nécessaire dans l'étude présente, une telle détente n'a pas été introduite dans la simulation. En conséquence,  $\beta_r$  est le seul paramètre ne dépendant que de  $L/\lambda$ . Son estimation expérimentale permet d'estimer  $L/\lambda$  par l'utilisation de la fonction  $\beta_r^{(\nabla)}(L/\lambda)$  inverse.

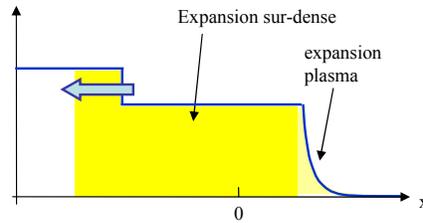


FIGURE 3.12 – Schéma de la situation de type détente plasma.

Grâce aux courbes  $\beta_r^{(\nabla)}(L/\lambda)$  et  $\beta_\phi^{(\nabla)}(L/\lambda)$ , des corrections des signaux pour compenser les effets dus à la réflexion sur un gradient sont possibles. Appliquer une correction peut permettre de remonter à 2 informations :

- Calcul de la longueur de gradient et de la phase Doppler associée à une expansion surdense derrière le plasma en détente par la méthode suivante :
  - 1 Mesure expérimentale de  $\beta_r$ .
  - 2 Déduction de  $L$  via  $\beta_r^{(\nabla)}(L/\lambda)$ .
  - 3 Déduction de  $\beta_\phi^{(\nabla)}(L/\lambda)$
  - 4 Calcul de la phase Doppler  $\phi^{(D)} = 2\phi_s - \phi_p - \beta_\phi^{(\nabla)}(L/\lambda)$
- Le fonction diélectrique derrière le plasma en détente si la longueur de gradient est largement inférieure à l'épaisseur de peau de la sonde. En effet, les équations de Fresnel ne sont pas directement utilisables mais une partie de l'information mesurée est due aux modifications de la fonction diélectrique derrière le plasma en détente. La méthode à utiliser est la suivante : Calculer la longueur de gradient  $L$  via  $\beta_r^{(\nabla)}(L/\lambda)$  puis utiliser à nouveau le programme de résolution Helmholtz en fixant cette fois-ci la longueur de gradient  $L$ . Il s'agit de calculer toutes les possibilités en faisant varier  $\alpha_{ne}$  et  $\alpha_\nu$  et de ne retenir que la solution vérifiant simultanément les 4 signaux mesurés expérimentalement. Cette méthode a été testée et fonctionne. En revanche, la véracité des résultats

est mise en doute car le modèle plasma peut ne pas être pertinent pour décrire la détente.

Expérimentalement, on se rend compte que le modèle issu de la résolution des équations d'Helmholtz appliqué à un plasma décrit pas le modèle de Drude ne permet pas de décrire toutes les situations. Les corrections potentiellement applicables peuvent s'avérer fausses si la matière en détente est mal décrite pas un tel modèle, dans le cas d'une recombinaison sous forme gazeuse par exemple. Nous allons examiner ce cas dans le paragraphe suivant.

### 3.2.4.2 Expansion gazeuse

Lors de la détente, la densité chute. Les effets de bande présent dans les solide sont ici inexistant, les atomes retrouvent leurs configurations d'atome isolée et, si la température n'est pas suffisante, les électrons sont susceptible de se recombinaison avec les ions pour former un gaz neutre. Notons que les énergies de premières ionisations sont de 6 eV pour l'aluminium, 7.7 eV pour le cuivre et 9.2 eV pour l'or, de ce fait supérieures aux températures électroniques que l'on s'attend à obtenir avec des lasers de pompe autour du  $J/cm^2$  (voir paragraphe 1.5). Les propriétés optiques de la vapeur métallique sont délicates à décrire d'un point de vue théorique et n'ont pas été étudiées dans le cadre de cette thèse. Notons simplement que, suite à la recombinaison, le profil de densité électronique entre le gaz et la matière chauffée en retrait redevient raide. La divergence du champ électrique au point de rebroussement s'amointrit et les effets d'absorption résonante disparaissent.

L'indice optique du gaz est attendu légèrement supérieur à 1 pour la partie réelle. Si le gaz n'est pas absorbant, sa partie imaginaire est nulle. Il ne perturbe pas la mesure et  $\beta_r = 1$ . Si, en revanche, le gaz est légèrement absorbant, la réflectivité se comporte de manière analogue dans les 2 polarisations et  $r_p^{(Gaz)} = r_s^{(Gaz)}$ . Les réflectivités mesurées deviennent :

$$\begin{cases} r_s &= r^{(Gaz)} \cdot r_s^{(Fr)} \\ r_p &= r^{(Gaz)} \cdot r_p^{(Fr)} \end{cases} \quad (3.22)$$

Sachant que  $r_p^{(Fr)} = [r_s^{(Fr)}]^2$  et que  $r^{(Gaz)} \leq 1$ , l'expansion gazeuse se détecte par  $\beta_r \geq 1$ .

### 3.2.4.3 Gaine d'électrons sur la surface de la cible.

Suite à l'élévation de la température, des électrons peuvent avoir une énergie supérieure au travail de sortie (Work Function), c'est à dire l'énergie minimale nécessaire pour arracher un électron depuis le niveau de Fermi jusqu'à un point situé en dehors du métal. On utilise les résultats issus du modèle développé par l'équipe de Ping *et. al* en référence [63]. Il permet la description de la structure électronique à l'interface or-vide. Le modèle suppose que les ions

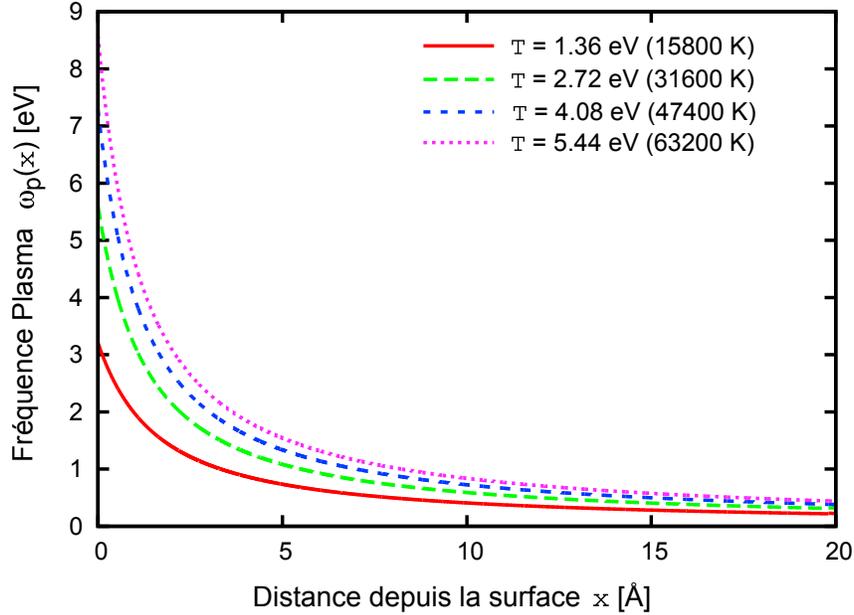


FIGURE 3.13 – Fréquence plasma dans la gaine électronique formée à l’interface or-vide en fonction de la distance pour plusieurs températures électroniques.

sont dans leurs positions initiales alors que les électrons ont le temps d’atteindre un équilibre thermodynamique et électrostatique. On se place donc à quelques centaines de fs juste après le dépôt d’énergie par la pompe. Les auteurs utilisent les hypothèses suivantes :

- Les ions sont représentés par une charge uniforme dans l’espace (Jellium).
- Les densité d’états électroniques ne dépendent pas de la température.
- Les électrons sont décrits classiquement avec une distribution de Fermi Dirac : modèle de Thomas Fermi à température non nulle.

Deux différentes DOS sont utilisées selon la position spatiale. Dans l’or, ils utilisent la forme présentée en figure 1.4. Il s’agit d’une DOS réaliste comprenant les effets de bande  $d$ . Dans le vide, ils utilisent la forme du gaz d’électrons libres en  $(E - W)^{1/2}$  où  $W$  est le travail de sortie d’un électron  $W = 4.8 \text{ eV}$  [64].

Ils en déduisent alors la forme de la densité électronique à l’interface, elle évolue selon une forme asymptotique.

$$n_e(x) \sim \frac{k_B T_e}{(x - x_0)^2} \quad (3.23)$$

Les électrons ayant une énergie supérieure au travail de sortie s’échappent de la surface du matériau et laisse derrière eux une charge positive. Ils ne partent pas très loin dans le vide et sont rappelés par la charge positive. À l’équilibre, se forme une gaine électronique (elec-

tron sheath) à l'interface or-vide dont la largeur est de l'ordre de quelques Angström pour des températures de l'ordre de l'eV. L'évolution spatiale de la fréquence plasma de la gaine électronique est représentée sur le graphique de la figure 3.13.

Ensuite, les auteurs utilisent cette forme de profil spatial pour la densité électronique dans un modèle de Drude avec une fréquence de collision allant de  $10^{-17}$ s à l'infini et en déduisent que cette gaine électronique est sans effet sur la réflexion et la transmission d'une sonde. Sensibles à de faibles variations, la présence d'une telle gaine peut cependant avoir de l'influence sur les déphasages. Elle se comporterait, vis-à-vis de la sonde, de la même manière que l'expansion sous-dense de type plasma pour de faibles longueurs de gradient et est susceptible d'intervenir très rapidement après le dépôt laser.

### 3.2.5 Résumé des types d'expansion.

En résumé, l'équation  $R_p = R_s^2$  nous permettra de déterminer le schéma d'expansion dans lequel la matière se trouve. Le tableau 3.1 récapitule la méthode à utiliser. Indépendante des propriétés diélectriques, cette relation est vérifiée dans le cas de la situation isochore. L'interface entre le vide et le milieu est raide et ne s'est pas déplacé. Les mesures simultanées de  $\beta_r = r_p/r_s^2$  et  $\beta_\phi = 2\phi_s - \phi_p$  sont utiles pour s'en assurer. Naturellement, la situation isochore répond à  $\beta_r = 1$  et  $\beta_\phi = 0$ . En particulier, la mesure de  $\beta_r$  est indépendante de l'effet Doppler et donne des informations sur la raideur de l'interface. Dans le cas d'une expansion sur-dense, l'interface reste raide donc  $\beta_r = 1$  mais le déplacement de l'interface influence les signaux en phase. Si l'interface se déplace de la cible vers le vide, on trouvera  $\beta_\phi > 0$ . Ce type d'expansion nous permet de séparer les contributions hydrodynamique et diélectrique à la phase et à la réflectivité en notant que  $\beta_\phi = \phi^{(D)}$  et  $\beta_\varepsilon = \phi_s^{(Fr)}$ . De plus, nous avons montré que, dans le cas d'une expansion de type sous-dense, les équations de Fresnel ne s'appliquaient plus donc on reconnaîtra ce type d'expansion en notant que  $\beta_r \neq 1$ . En particulier, pour une détente de type plasma ou suite à la formation d'une gaine électronique, on s'attend à mesurer  $\beta_r < 1$  alors que pour une détente de type gaz neutre, on s'attend à mesurer  $\beta_r \geq 1$ .

## 3.3 Exemple d'interprétation qualitative de mesure sur du cuivre

Les échantillons sont des dépôts métalliques de 300 nm d'épaisseur sur un substrat en verre poli à  $\lambda/4$ .

### 3.3. EXEMPLE D'INTERPRÉTATION QUALITATIVE DE MESURE SUR DU CUIVRE

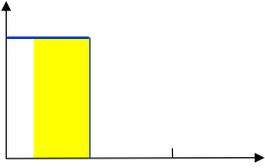
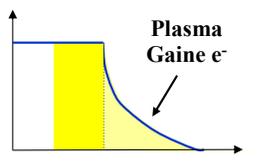
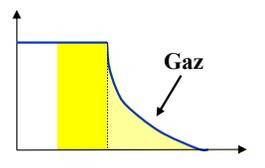
<p>Situation isochore</p>  <p>L'interface reste raide, les équations de Fresnel s'appliquent.</p>	<p>Expansion sur-dense</p>  <p>L'interface en mouvement reste raide. Les équations de Fresnel s'appliquent en remplaçant <math>\phi_s</math> par <math>\beta_\epsilon</math>.</p>	<p>Expansion sous-dense type plasma - gaine électronique</p>  <p>Réflexion de la sonde sur un gradient de densité</p>	<p>Expansion sous-dense type gaz</p>  <p>Propagation de la sonde au travers d'un gaz en expansion.</p>
<p><math>\beta_r = 1</math> <math>\beta_\phi = 0</math></p>	<p><math>\beta_r = 1</math> <math>\beta_\phi = \phi^{(D)}</math></p>	<p><math>\beta_r &lt; 1</math> <math>\beta_\phi &gt; 0</math></p>	<p><math>\beta_r \geq 1</math></p>

TABLE 3.1 – Récapitulatif des schémas d'expansion complétés des quantités  $\beta_\phi$  et  $\beta_r$  utile pour les identifier.

Comme présenté sur la figure 3.14, en règle générale, juste après excitation du laser de pompe, les signaux en phase augmentent très rapidement. La phase en P augmente deux fois plus que la phase en S, ce qui est le signe d'une modification de la fonction diélectrique du milieu. Sondé ici à 800 nm, le cuivre ne présente pas de transition interbande à cette longueur d'onde et un simple modèle de Drude peut être appliqué. Cette montée de la phase est interprétée comme étant due en majorité à l'augmentation de la densité électronique en bande de conduction (voir paragraphe 3.2.2). En effet, le cuivre étant un métal noble, la proximité de la bande d avec le niveau de Fermi favorise l'excitation d'électrons en bande de conduction. Plus tard, les signaux diminuent à cause du refroidissement lié à la conduction thermique au sein du milieu.

Sur des temps plus longs (de l'ordre de la picoseconde), si l'énergie déposée est suffisante, des processus hydrodynamiques se mettent en place. Pour les apprécier, un intérêt particulier est porté aux mesures de  $\beta_\phi$  et  $\beta_r$ . À faible fluence (voir figure 3.14(b)),  $\beta_r = 1$  tout au long de la mesure. Cela signifie que le gradient de densité en face avant reste raide. La détente se détermine en prêtant attention aux valeurs de  $\beta_\phi$ . Toujours sur la figure 3.14(b),  $\beta_\phi$  commence son évolution à 0 puis augmente. Sachant que  $\beta_\phi > 0$  est compatible avec un effet Doppler, ces mesures sont la signature d'une détente de type "expansion surdense". Dans ce cas, la fonction diélectrique peut être calculée sans hypothèse, directement à partir des relations (3.5), (3.6) ou (3.7) en prenant soin de corriger les phases par un éventuel effet Doppler. À titre indicatif, au bout de 10 ps, la matière s'est détendue sur 1.8 nm. Concernant la réflectivité, elle diminue juste après de dépôt d'énergie de la pompe. Cela est due en majorité à une augmentation des fréquences de collision favorisant le transfert d'énergie de la sonde vers la WDM.

À fluence plus élevée, 3 J/cm<sup>2</sup> incident, nous conservons aux temps courts les mêmes types d'évolution des phases et des réflectivités (montées des phases et baisse des réflectivités). En revanche, comme présenté en figure 3.14(d), le rapport  $\beta_r$  n'est plus égal à 1 mais il évolue temporellement. Suite aux résultats issus des simulations Helmholtz présentés au paragraphe 3.2.4.1, une valeur de  $\beta_r < 1$  s'interprète effectivement comme une détente de type plasma. En effet, la fluence étant plus élevée que dans le cas précédent, un tel comportement est plausible. La simulation Helmholtz nous donne également un ordre de grandeur de la longueur de gradient associée. À  $t = 2.5$  ps, la mesure donne  $\beta_r = 0.96$  ce qui correspond, à la lecture du graphique 3.11, à une longueur de gradient de  $L = 1.5 \lambda / 1000 = 1.2$  nm. Toujours en lisant ce graphique, à cette valeur de longueur de gradient correspond une valeur théorique de déphasage  $\beta_\phi = 0.06$  rad ce qui est plus faible que la valeur mesurée expérimentalement qui est de 0.14 rad. L'écart entre les deux est dû à une expansion de type sur-dense derrière le plasma en détente. La phase Doppler associée est suivant notre modèle

### 3.3. EXEMPLE D'INTERPRÉTATION QUALITATIVE DE MESURE SUR DU CUIVRE

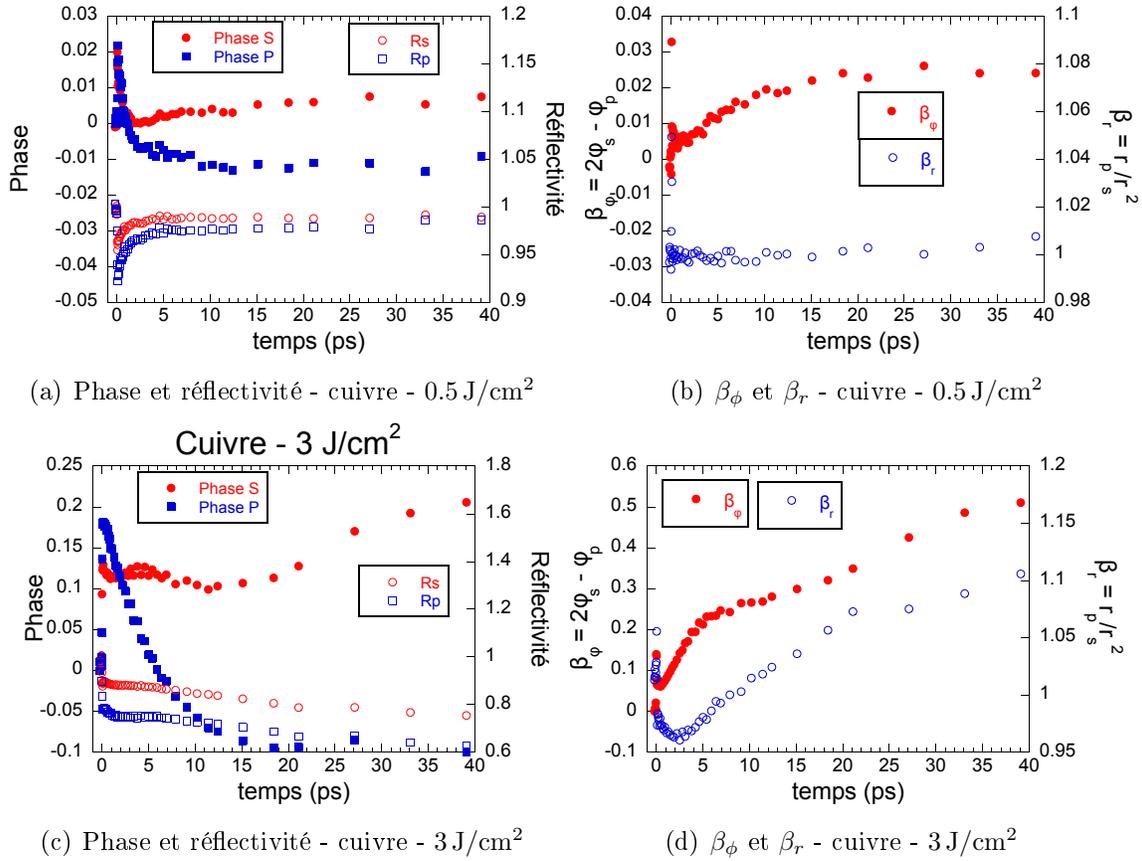


FIGURE 3.14 – Évolution de la phase et de la réflectivité mesurée sur une cible de cuivre pour plusieurs fluence.

de  $\phi^{(D)} = 0.14 - 0.06 = 0.08$  rad, ce qui correspond à un déplacement de 7 nm. La détente est donc à ce stade de type "sur-dense + plasma". Plus tard, le rapport  $\beta_r$  augmente et devient supérieur à 1 ce qui se traduirait par une transition gazeuse. La densité critique recule vers la cible et  $\beta_\phi$  augmente moins rapidement.

En conclusion, l'interprétation qualitative présentée ci-dessus nous montre que les résultats sont riches en physique mais l'interprétation peut parfois s'avérer difficile, en particulier pour les temps de plusieurs picosecondes quand la cible est excitée à des fluence  $\geq 1$  J/cm<sup>2</sup> pour lesquels une description de la matière en phase diluée (gaz) devient nécessaire. Cette description est en dehors des travaux relatifs à cette thèse. Durant l'évolution temporelle du système, les propriétés diélectriques et hydrodynamiques se mêlent et ont toutes les deux des répercussions sur les signaux mesurés. Le critère que nous avons défini nous permet de séparer les 2 contributions dans des cas simples, notamment quand le rapport  $\beta_r = 1$ . Pour ces raisons, dans le chapitre suivant, on s'intéresse à 2 problèmes plus simples : l'hydrodynamique de la phase condensée et l'évolution de la fonction diélectrique, également en phase condensée.



## Résultats Expérimentaux

L'étude expérimentale suivante est motivée d'une part par l'étude hydrodynamique de la surface et d'autre part par l'évolution de la fonction diélectrique.

Étudier la détente de la matière a de l'intérêt dans la mesure où la détente influe sur la relaxation de pression du matériau irradié donc influe indirectement sur la transition de phase. Le régime hydrodynamique dans lequel va se trouver la matière irradiée va dépendre fortement de la quantité d'énergie déposée. A faible énergie, il n'y a pas de mouvement de surface et seuls des photo-électrons sont émis de la surface vers le vide. Si l'énergie déposée est largement plus importante, pour des températures supérieures à 10 eV, la matière se détend vers le vide sous forme de plasma. On s'intéresse ici au régime intermédiaire légèrement supérieur au seuil de dommage. En général, dans ce type d'étude, l'expansion est soit négligée, soit simulée par des codes hydrodynamiques mais l'utilisation de tels codes peut s'avérer difficile dans le régime WDM. Comme présenté au §3, nous disposons d'un outil pour distinguer expérimentalement différents types d'expansion. Nous allons appliquer cet outil à un métal simple, l'aluminium. De plus, l'évolution de l'interface va également avoir de l'influence sur la mesure d'interférométrie donc, pour mesurer  $\epsilon$ , cette évolution doit être connue.

La fonction diélectrique, comme expliqué au §1.2, contient toute la physique de l'interaction entre les ondes électromagnétiques et la matière. Elle détermine en particulier l'absorption laser qui est encore souvent un paramètre ajustable des codes d'interactions. Plus généralement, sa détermination expérimentale dans le régime mal connu de la WDM fournit des points de référence pour certains modèles comme ceux présentés au chapitre 1 ou pour des calculs numériques plus évolués (dynamique moléculaire ab initio par exemple). De plus  $\epsilon$  est étroitement liée à la structure électronique de la matière, et l'interprétation des mesures avec les modèles simples présentés au chapitre 1 permettra de déduire certains des paramètres du matériau en condition WDM comme la densité électronique et la fré-

quence de collision des électrons de conduction. Ces paramètres sont généralement utilisés dans des codes hydrodynamiques d'interaction laser matière. Au cours de cette thèse, nous nous sommes particulièrement intéressés à l'étude de l'or pour laquelle on attend de fortes variations de  $\epsilon$  dans la région WDM dues à la proximité de la bande  $d$  avec le niveau de Fermi.

## 4.1 Les cibles

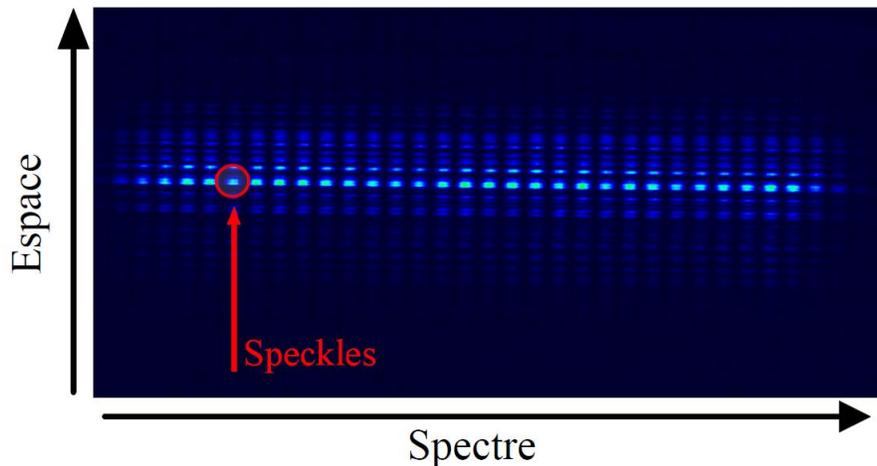
### 4.1.1 Nature

Mesurer une évolution de fonction diélectrique ou des déplacements nanométriques avec un FDI requiert des qualités de cibles irréprochables. La surface doit être réfléchissante comme un miroir, avec une précision en terme de planéité et de rugosité suffisante pour que la réflexion diffuse soit négligeable devant la réflexion spéculaire. Nous avons réalisé des expériences de mesure de déphasage sur des cibles auto-supportées afin d'étudier la vitesse de détente d'un matériau irradié, elles se sont traduites par des échecs car les qualités des cibles n'étaient pas suffisantes.

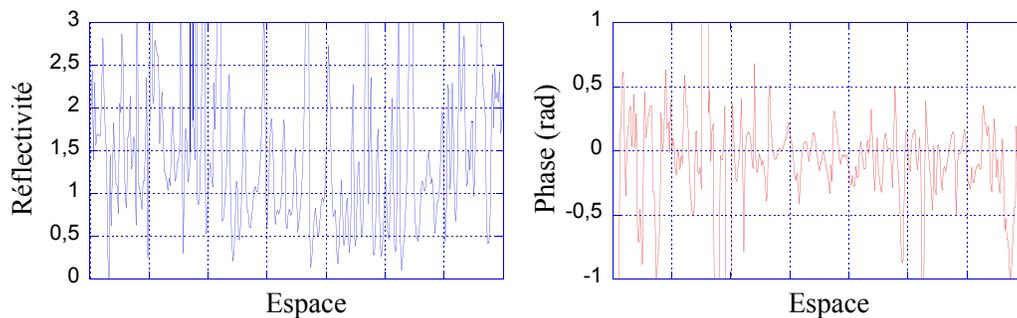
Une première expérience, réalisée sur l'installation UHI100 du CEA-Saclay munie d'un double miroir plasma donnant accès à des impulsions relativistes en régime de haut contraste ( $> 10^{10}$ ), visait à caractériser le transport d'électrons rapides et leur dépôt d'énergie dans des cibles solides d'aluminium. La partie FDI consistait à mesurer la détente en face arrière de l'échantillon afin d'en déduire une température. Les cibles étaient des multi-couches auto-supportées d'épaisseur allant de 5 à 19  $\mu\text{m}$ . En aluminium, elles contenaient un traceur de cuivre - couche de 3  $\mu\text{m}$  d'épaisseur - situé à une profondeur variable. Les cibles étaient de qualité suffisante pour étudier les phénomènes suivant :

- les rayonnements émis en face arrière à l'aide d'une camera Streak,
- le rayonnement  $K_\alpha$  par un spectromètre en configuration Von Hamos,
- le spectre des protons accélérés en faces avant et arrière.

En effet, ces diagnostics ne requièrent pas de qualité de surface particulièrement élevée. Les rayonnements émis en face arrière ne sont pas issus de réflexions spéculaires, le rayonnement  $K_\alpha$  est émis en volume et le diagnostic de mesure de proton n'est pas imageur. En revanche, le FDI demande l'utilisation d'un faisceau de sonde annexe. Utilisé en réflexion, la qualité de mesure dépend du bon déroulement de la réflexion spéculaire sur la surface de la cible. Si celle-ci présente des irrégularités, la lumière diffuse dans toutes les directions. Ceci a deux effets, d'une part une partie de lumière diffusée n'est pas collectée, et d'autre part des diffusions multiples avec une lumière cohérente à différents endroits peuvent produire des effets de



(a) Tavelures (speckles en anglais) apparaissant dans le spectre d'un tir FDI. Ils sont dus à une irrégularité de la cible à l'échelle de la longueur d'onde et proviennent d'un mécanisme d'interférence. Ils ont des répercussions très néfastes sur la qualité de mesure.



(b) Coupe dans la direction spatiale de la réflectivité, les fluctuations sont supérieures à 100%. (c) Coupe dans la direction spatiale de la phase, les fluctuations sont de l'ordre du radian.

FIGURE 4.1 – Résultats FDI d'une expérience effectuée sur des cibles possédant des irrégularités de surface.

tavelures (speckles en anglais), même au travers d'un système d'imagerie. La figure 4.1(a) présente une image expérimentale obtenue lors de cette expérience. La présence de tavelures réduit considérablement la qualité de la mesure, le bruit devient largement supérieur aux signaux à mesurer.

Pour ces raisons, nous n'avons pas pu réaliser de mesures FDI lors de cette expérience. De la même manière, une deuxième expérience réalisée sur la chaîne Eclipse du CELIA visait à mesurer le temps de disparition de l'ordre à courte distance par spectroscopie d'absorption X résolue en temps. Couplé à un diagnostique XANES, le FDI avait pour but ici de caractériser l'évolution volumique de l'échantillon. Les cibles étaient de fines couches de 100 nm auto-suspendues présentant des irrégularités de surface. Le XANES est basé sur l'absorption en volume des rayons X et n'est donc pas sensible à ces irrégularités. Comme durant l'expérience

décrite plus haut, des tavelures apparaissent sur les images réduisant considérablement la qualité de la mesure (voir figure 4.1).

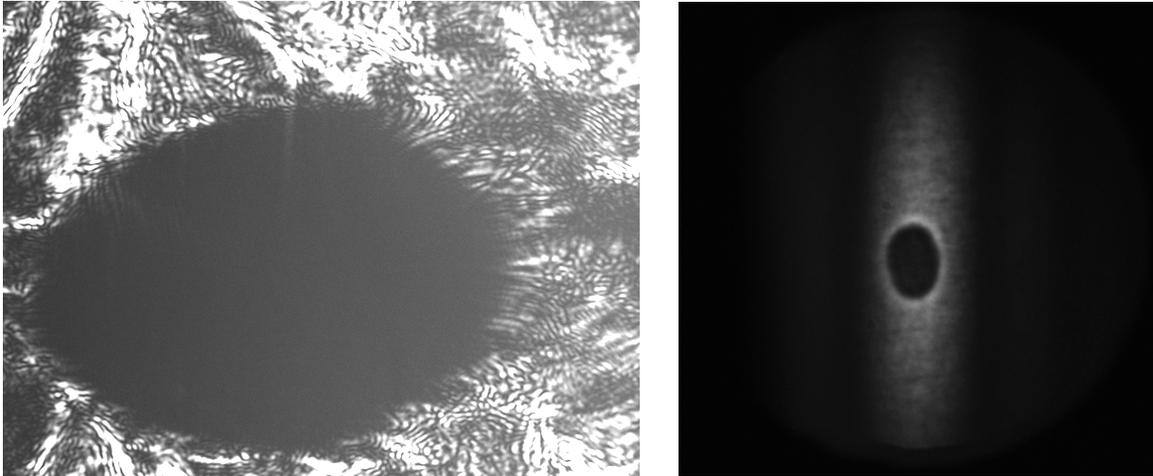


FIGURE 4.2 – (Gauche) Image d’un cratère prise par la caméra de visualisation positionnée sur la voie sonde sur une cible présentant des irrégularités de surface, de nombreuses tavelures (speckles en anglais) y sont présentes. (Droite) Image d’un cratère sur cible sans irrégularité, les tavelures y sont absentes.

Pour ces raisons, nous avons choisi de travailler, pour toutes les expériences figurant dans ce manuscrit, avec des dépôts métalliques réalisées par l’Institut de Physique Nucléaire d’Orsay. Le métal est déposé sur un substrat en verre de 7 mm d’épaisseur poli à  $\lambda/4$ . Ils sont de forme circulaire avec un diamètre de 100 mm pour être compatibles avec le porte cible stabilisé en rotation. 300 nm de métal y sont déposés, épaisseur suffisante comparée aux épaisseurs de peaux pour des lasers optiques. Avec ces cibles, aucune tavelure n’apparaît sur les images (voir figure 4.2).

### 4.1.2 Caractérisation de la couche d’oxyde

Les cibles sont conservées dans un environnement sous vide, à une faible pression de 0.01 bar. Malgré cette précaution, une quasi-inévitable fine pellicule d’oxyde vient se former sur les surfaces des échantillons autre que l’or. Pour l’aluminium, quand celui-ci est exposé à l’air juste après son dépôt, une couche de 1.5 nm d’ $\text{Al}_2\text{O}_3$  se forme instantanément [65]. La couche d’oxyde va évoluer selon les conditions dans lesquelles l’échantillon est conservé. Dans un environnement sec et froid, la couche se stabilise à environ 2.5 – 5 nm. Elle peut atteindre plusieurs  $\mu\text{m}$  dans un environnement chaud et humide.

Conscient que les couches d’oxydes peuvent modifier l’indice du matériau mais également ses propriétés, nous avons choisi de caractériser nos échantillons par ellipsométrie. Cette

méthode consiste à mesurer la réflectivité d'une onde en incidence oblique sur un échantillon. Un faisceau incident est polarisé linéairement selon un angle  $\theta_p$  connu et se réfléchit sur une cible. Éventuellement, sa polarisation passe de linéaire à elliptique. Le faisceau passe ensuite au travers d'un analyseur (polariseur) caractérisé par son angle  $\theta_a$ . La mesure de réflectivité pour plusieurs angles  $\theta_a$  permet de déduire [66] le rapport  $\rho = R_p/R_s$  qui, après utilisation de l'équation (3.7), nous donne l'indice optique de l'échantillon multi-couche. Les mesures ont été réalisées à l'Institut des Sciences Moléculaires de l'Université de Bordeaux 1. Comme attendu, les valeurs mesurées sur l'or sont identiques aux valeurs tabulées, l'or ne s'oxyde pas. En revanche, une couche d'oxyde non négligeable s'est formée sur les dépôts d'aluminium, modifiant les valeurs d'indices des cibles. L'oxyde d'aluminium est un diélectrique de formule chimique  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Transparent aux radiations visibles, son indice optique est réel et varie de 1.80 à 1.75 à ces longueurs d'ondes [67]. En supposant une couche d'oxyde homogène, son épaisseur peut être déduite par comparaison des mesures d'indices faites par ellipsométrie avec un indice effectif calculé en utilisant les lois de Fresnel en multi-couche [68]. Pour ce faire, on a considéré une épaisse couche d'aluminium (indices optiques données par [67]) précédée par une couche d'alumine dont on a fait varier l'épaisseur pour retrouver nos mesures. Comme présenté en figure 4.3, nous en avons déduit une couche d'oxyde de 10 nm. Elle sera prise en compte dans les simulations hydrodynamiques.

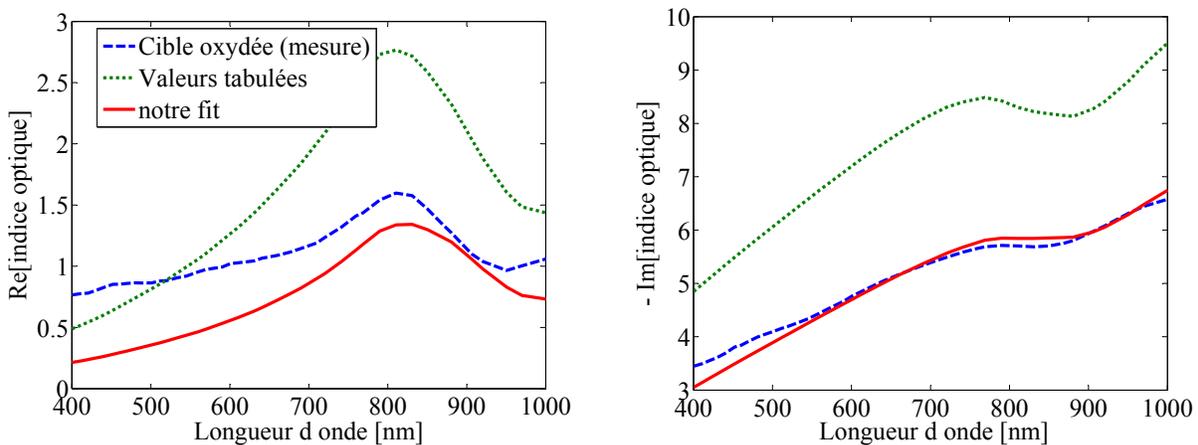


FIGURE 4.3 – Parties réelles et imaginaires de l'indice optique de l'aluminium issues des mesures par ellipsométrie sur nos cibles, issues des valeurs tabulées et issues du fit en considérant une couche d'oxyde de 10 nm.

## 4.2 Étude de l'expansion hydrodynamique de l'aluminium

Cette partie est consacrée à l'étude de l'expansion hydrodynamique. Les résultats sur l'aluminium seront présentés. Rappelons que, pour une sonde à 45° d'incidence, on obtient depuis les équations de Fresnel une relation unique entre les polarisations S et P :

$$R_p = R_s^2 \quad (4.1)$$

où  $R_{s,p} = r_{s,p}^{(Fr)} e^{i\phi_{s,p}^{(Fr)}}$  est le coefficient de réflexion pour un champ polarisé selon S ou P écrit lorsque les hypothèses des équations de Fresnel s'appliquent. Cette relation implique  $\beta_\phi^{(Fr)} = 2\phi_s^{(Fr)} - \phi_p^{(Fr)} = 0$  et  $\beta_r^{(Fr)} = r_p^{(Fr)} / [r_s^{(Fr)}]^2 = 1$ . Ces relations ne dépendent pas de l'indice optique et étudier l'évolution des 2 quantités  $\beta_\phi$  et  $\beta_r$  permet de faire la distinction entre les contributions hydrodynamique et diélectrique à la phase et à la réflectivité mesurées par une expérience pompe sonde.

Une contribution importante de l'expansion hydrodynamique sur les mesures FDI se manifeste par l'effet Doppler. Nous avons montré au chapitre 2 que la phase Doppler s'écrivait en fonction du déplacement de l'interface selon :

$$\phi^{(D)} = \frac{4\pi}{\lambda} \cos \theta d \quad (4.2)$$

si la surface réfléchissante s'est déplacée d'une distance  $d$  vers le vide. Nous avons montré également que, si  $\beta_r = 1$  alors cette phase Doppler se calcule par  $\beta_\phi = \phi^{(D)}$ , quelles que soient les propriétés de l'échantillon. On utilise cette technique pour mesurer la dynamique d'expansion de la surface d'un échantillon d'aluminium irradié par un laser ultra court à 800 nm. Sachant que l'effet Doppler dépend de la longueur d'onde de la sonde, les cibles l'aluminium sont sondées à 2 longueurs d'ondes différentes. Cela sera un argument supplémentaire pour valider l'interprétation. Comme présenté au paragraphe 4.1.2, une couche d'oxyde de 10 nm a été mesurée sur la surface des échantillons. On affirme que cette couche ne perturbe pas les mesures faites. En effet, sur un diélectrique, au maximum de l'intensité laser du champ de la pompe dans nos expériences ( $3 \times 10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$ ), la densité électronique reste 2 à 3 ordres de grandeur inférieure à la densité critique du champ de la pompe [69] et l'oxyde peut être considéré comme transparent.

### 4.2.1 Présentation des mesures

Les résultats des mesures de phases et de réflectivité pour les fluences laser de 0.5 et 1 J/cm<sup>2</sup> sont présentés en figure 4.4. Ces fluences sont supérieures au seuil d'ablation qui est, dans des conditions expérimentales proches des nôtres, de 0.2 J/cm<sup>2</sup> [70]. Concernant les phases, sauf dans les premiers instants, elles sont globalement croissantes et le signal est plus

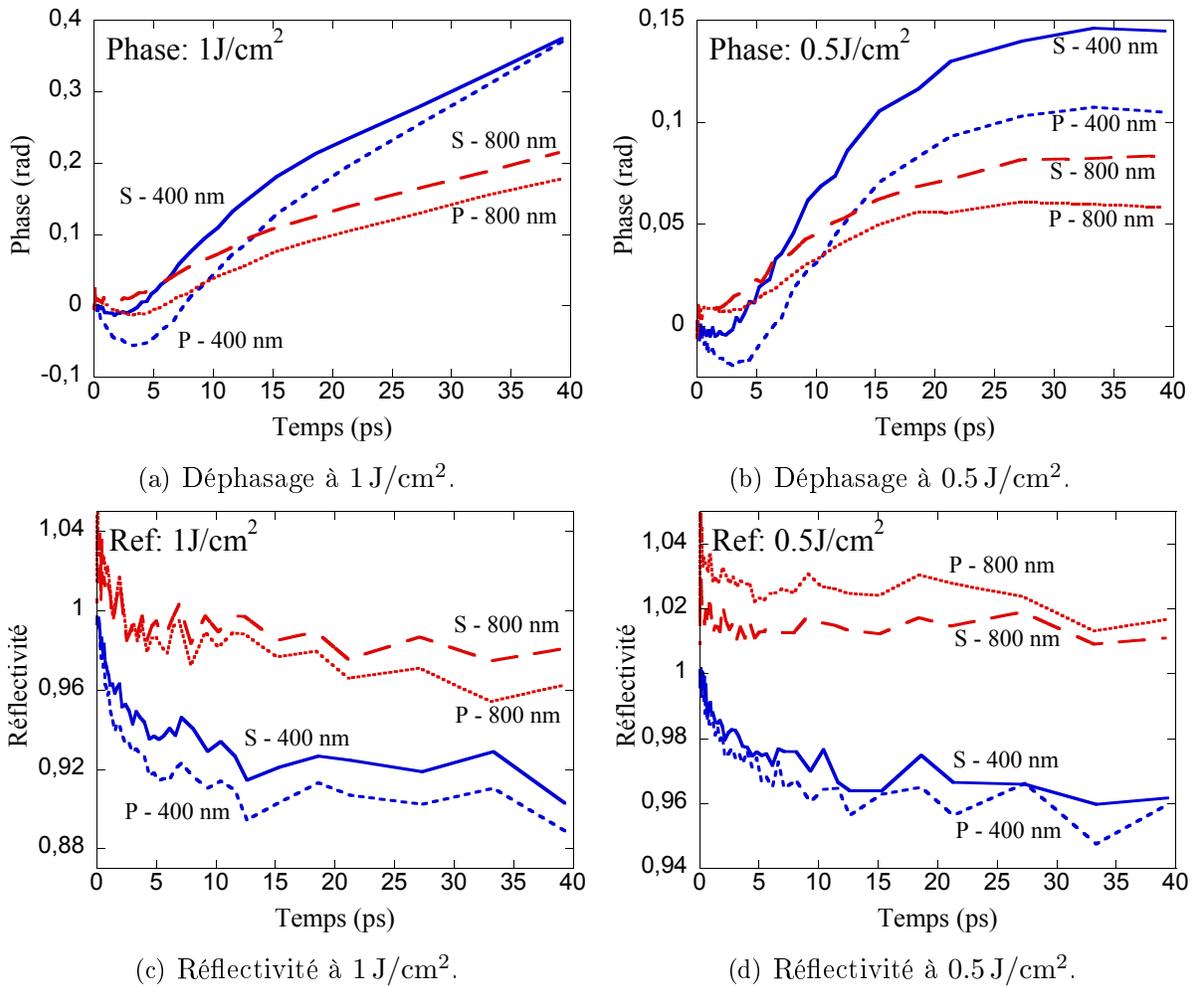


FIGURE 4.4 – Évolution des phases et réflectivité en fonction du temps sur une cible d'aluminium pour 2 longueurs d'onde de sonde.

important, à même fluence laser, pour les sondes à 400 nm. Ces effets sont le signe d'un déplacement de l'interface qui se manifeste par l'effet Doppler. Par contre, les signaux, tels qu'ils sont présentés, sont la conséquence à la fois d'une modification des propriétés diélectriques et de l'hydrodynamique. Pour séparer la contribution hydrodynamique, on s'intéressera dans la suite à  $\beta_\phi$ . Concernant les réflectivités, on note qu'elles sont inférieures à 1 pour des sondes à 400 nm. Cela est une conséquence de l'augmentation des fréquences de collisions électron-phonon avec la température ionique. En revanche, pour une sonde à 800 nm, notamment sur la série à  $0.5 \text{ J/cm}^2$ , les réflectivités sont supérieures à 1. Cela est dû à une modification des propriétés diélectriques de l'aluminium qui possède une transition interbande à 800 nm. En effet, ces observations sont en accord avec les résultats de Fisher *et al.* [54] et s'expliquent comme suit : à l'état solide froid, l'aluminium possède une transition interbande entre bandes parallèles de la bande de conduction sur un domaine conséquent de l'espace des moments [71]. Cette contribution est dominante à 800 nm par rapport aux transitions intrabandes décrites

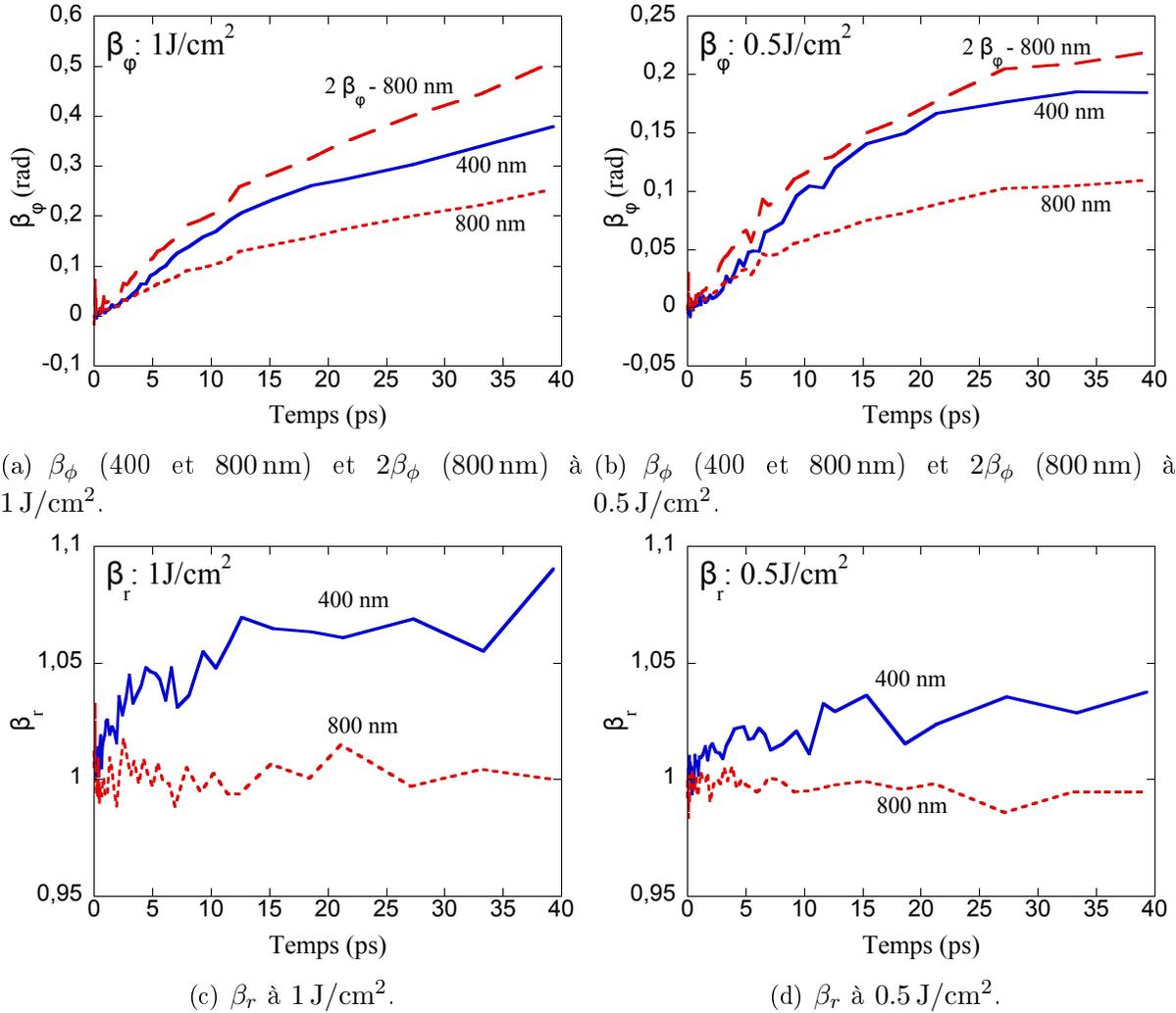


FIGURE 4.5 – Évolution des quantités  $\beta_\phi$  et  $\beta_r$  en fonction du temps sur une cible d'aluminium pour 2 longueurs d'onde de sonde.

par le terme de Drude. En chauffant modérément, pour des températures de 2 – 3 eV et supérieures, les collisions e-e et e-ph ont pour conséquence d'élargir de pic d'absorption issu de la transition interbande et elle devient moins efficace à 800 nm. En conséquence, l'absorption interbande diminue alors que la contribution intrabande augmente. L'absorption totale est inférieure à sa valeur froide pour des intensités laser modérées ( $< 5.10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$ ) et l'aluminium est plus réfléchissant qu'à froid. Au delà, la contribution intrabande domine et l'absorption augmente avec l'intensité du chauffage.

Pour apprécier la réponse hydrodynamique des cibles, on s'intéresse à  $\beta_\phi$  et  $\beta_r$ . Ils sont présentés en figure 4.5. À la lecture des résultats, pour chaque fluence et pour chaque longueur d'onde de sonde,  $\beta_\phi$  augmente continument alors que le rapport  $\beta_r$  reste à une valeur proche de 1 sur les 40 ps de scan. Notamment pour une sonde à 800 nm, le rapport est effectivement égal à 1, ce qui suggère une expansion de type de sur-dense (voir schéma 3.8). Cependant,

deux faits sont en désaccord avec ce type d'expansion :

- Pour une sonde à 400 nm, le rapport n'est pas exactement égal à 1 mais prend des valeurs légèrement supérieures, notamment à 1 J/cm<sup>2</sup>.
- L'effet Doppler doit être deux fois plus important à 400 nm qu'à 800 nm et nous devrions avoir  $\beta_\phi^{(400)} = 2\beta_\phi^{(800)}$ , ce qui n'est pas le cas, notamment à 1 J/cm<sup>2</sup>.

Ne comprenant pas cette différence de comportement aux 2 longueurs d'ondes, nous avons d'abord suspecté des problèmes de qualité de cible. L'expérience a donc été réitérée avec des cibles différentes et les résultats furent identiques. Dans des conditions où les équations de Fresnel s'appliquent, le rapport  $\beta_r$  doit être égal à 1 quelque soit la longueur d'onde de la sonde. Au chapitre 2, nous avons étudié l'évolution de la phase et de la réflectivité pour une expansion de type plasma et nous en avons conclu que pour une telle expansion, le rapport  $\beta_r$  devenait  $< 1$  avec la détente. Ce modèle d'expansion de type plasma s'avère donc inadapté à l'interprétation des présentes mesures pour lesquelles  $\beta_r \geq 1$ . Nous en avons conclu, comme présenté dans la suite, que ces différences de comportement entre les 2 longueurs d'onde de sonde pouvaient trouver une explication si la cible n'est pas chauffée de manière homogène.

#### 4.2.2 Étude d'une in-homogénéité dans la cible

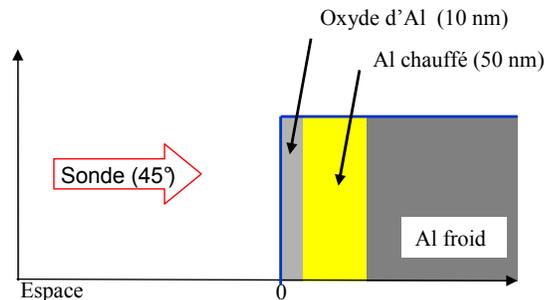


FIGURE 4.6 – Schéma de la cible utilisée dans la simulation. La densité critique se trouve à l'interface entre l'oxyde et l'aluminium chauffé.

On étudie l'évolution des 2 quantités  $\beta_\phi$  et  $\beta_r$  pour un échantillon chauffé de manière isochore. Les réflectivités dans les 2 polarisations S et P sont calculées dans un formalisme matriciel<sup>1</sup> (voir référence [72]). La cible numérique (schéma 4.6) est constituée d'une couche

1. Contrairement au formalisme utilisé pour la résolution des équations d'Helmholtz au chapitre 2 dans un gradient de densité, le formalisme matriciel possède l'avantage de pouvoir être utilisé avec des discontinuités dans le profil spatial d'indice. Si l'échantillon est constitué d'un empilement de plusieurs zones homogènes, l'échantillonnage n'a pas à être fin donc les temps de calcul sont grandement diminués.

d'oxyde d'aluminium d'indice  $N = 1.76$  à 800 nm et  $N = 1.78$  à 400 nm devant une couche d'aluminium chauffée. Ne cherchant pas ici des résultats quantitatifs mais juste à comprendre l'évolution des signaux et plus particulièrement pourquoi  $\beta_r > 1$ , on fixe ici l'épaisseur de la zone chauffée à 50 nm. Derrière la couche d'aluminium chaud, une épaisse couche d'aluminium froid est positionnée. Ses valeurs d'indice sont  $N = 2.77 - 8.35i$  à 800 nm et  $N = 0.49 - 4.84i$  à 400 nm. La fonction diélectrique de la zone chauffée est calculée par un modèle de Drude dans lequel la matière chauffée est caractérisée par sa fréquence de collision et par sa densité électronique en bande de conduction. À 800 nm, ce calcul est contestable puisque, comme nous l'avons vu précédemment, la fonction diélectrique est largement sensible aux transitions interbandes. Cependant, cette approche simplifiée permet de raisonner sur les valeurs de densité et de collisionnalité électroniques, ce qui est plus parlant que de raisonner sur les parties réelles et imaginaires de l'indice optique. Une des conséquences de cette représentation est qu'il faut introduire une densité électronique et une fréquence de collision différentes pour chaque longueur d'onde de sonde pour reproduire les valeurs d'indice optique froid. Ainsi,  $n_e = 1.7 \cdot 10^{23} \text{ cm}^{-3}$  et  $\nu_e = 1.73 \text{ fs}^{-1}$  pour  $\lambda = 800 \text{ nm}$  et  $n_e = 1.8 \cdot 10^{23} \text{ cm}^{-3}$  et  $\nu_e = 0.92 \text{ fs}^{-1}$  pour  $\lambda = 400 \text{ nm}$ .

L'aluminium possède 3 électrons en bande de conduction, compte tenu de la forme de la DOS en  $\sqrt{\varepsilon}$ , on s'attend à ce que ce nombre n'augmente pas avec le chauffage mais éventuellement diminue avec la détente. Quant à la fréquence de collision, on s'attend à ce qu'elle augmente pour une sonde à 400 nm avec la température du réseau ionique  $\nu_{e-ph} \sim T_i$  et éventuellement avec la température électronique car les fréquences de collisions  $e - e$  évoluent en  $T_e^2$  dans cette gamme de température. Pour une sonde à 800 nm, lors d'un chauffage modéré, la diminution globale de l'absorbance - due à la diminution des transitions interbandes - équivaut dans un modèle de Drude à une diminution de la fréquence de collision. Pour un chauffage plus important, l'absorbance devient supérieure à la valeur froide et la fréquence de collision équivalente dans le modèle de Drude est supérieure à la valeur froide.

Les résultats de la simulation pour une sonde à 800 nm puis à 400 nm sont présentés en figure 4.7. Nous avons tracé par des étoiles rouges sur le graphique les densités électroniques et fréquences de collisions correspondant à une épaisseur de peau de sonde de 50 nm. À droite de la ligne formée par les étoiles, l'épaisseur de peau  $y$  est plus petite. La sonde voit une zone homogène et l'on obtient  $\beta_\phi = 0$  et  $\beta_r = 1$ . À gauche, l'épaisseur de peau  $y$  est plus grande. Dans cette zone, la sonde se propage dans un matériau non uniforme et la relation (4.1) n'est plus satisfaite. Les conditions en terme de densité électronique et fréquence de collision correspondant à la cible froide sont représentées par le triangle bleu et les chemins (chauffage et expansion) par lesquels la cible va passer sont schématisés par les flèches bleues notées (a) et (b). Pour la sonde à 800 nm, la flèche (a) indique un chauffage modéré et une

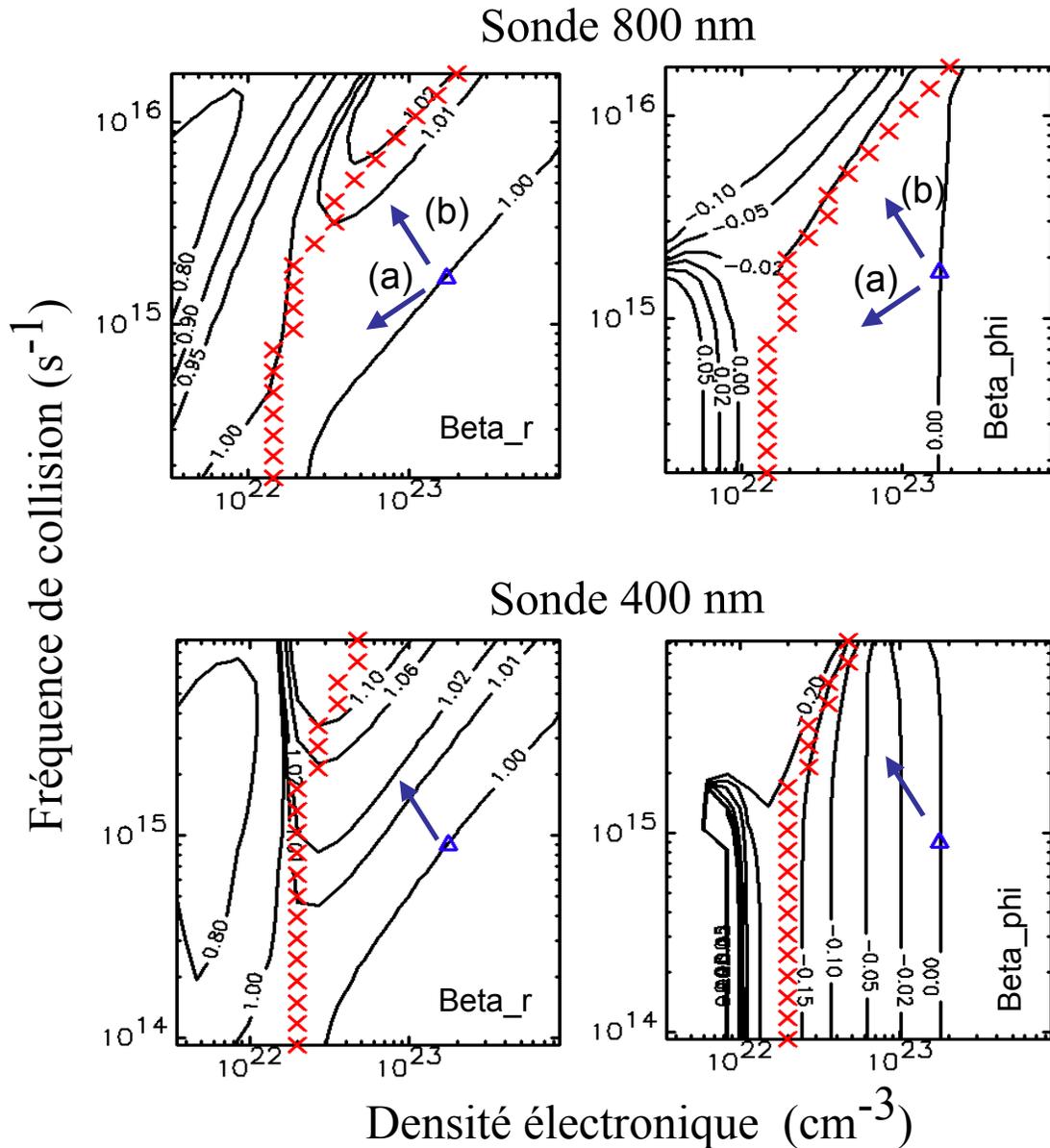


FIGURE 4.7 – (Gauche) Rapport des réflectivités  $\beta_r$  et (Droite) différence des phases  $\beta_\phi$  en fonction de la fréquence de collision et de la densité électronique pour une expansion de type sur-dense. Flèche bleue : (a) Fluence modérée ; (b) Fluence élevée.

détente : le système reste dans une zone où  $\beta_\phi = 0$  et  $\beta_r = 1$ . Les flèches (b) correspondent à un chauffage important - augmentation de  $\nu_e$  - et une détente. Dans ce cas,  $\beta_r$  peut devenir légèrement supérieur à 1 et  $\beta_\phi$  légèrement inférieur à 0. Pour la sonde à 400 nm, le chemin suivi par un chauffage (modéré ou non) et une détente est symbolisé par la flèche bleue (a,b).  $\beta_r$  devient supérieur à 1 et  $\beta_\phi < 0$ . L'effet est un ordre de grandeur plus important que pour la sonde à 800 nm. À 800 nm il est à noter que, si  $\beta_r = 1$  alors  $\beta_\phi = 0$  pour toutes les conditions présentes dans la simulation. De plus, dans cette simulation, les positions spatiales des interfaces entre les différentes couches sont fixes, on retrouve alors,  $\beta_\phi = \phi^{(D)} = 0$ , il n'y

a pas d'effet Doppler. Si la zone chauffée se dilate, l'interface entre la zone chauffée et l'oxyde se déplace vers le vide et, dans ce cas, la position de l'interface peut être déterminée par utilisation des équations  $\beta_\phi = \phi^{(D)}$  et (4.2).

Ceci est en accord avec les résultats expérimentaux. Dans la région sur-dense (zone chauffée), la diminution de densité électronique est trop faible pour avoir été observée à 800 nm mais elle est observée à 400 nm car  $\beta_r$  devient supérieur à 1. Par ailleurs, le fait que  $\beta_\phi$  devienne négatif dans une plus grande mesure à 400 nm explique pourquoi, dans nos mesures, nous trouvons  $\beta_\phi^{(400)} < 2\beta_\phi^{(800)}$ . Il est clair que nous avons observé une expansion de type de sur-dense, avec un gradient de densité raide à la densité critique (sinon on aurait  $\beta_r < 1$ ).

À 800 nm,  $\beta_r = 1$  donc nous pouvons mesurer la dynamique d'expansion à l'échelle de la picoseconde avec une précision de l'ordre de 1 nm comme nous le verrons dans la suite.

### 4.2.3 Déplacement d'interface et simulation Esther

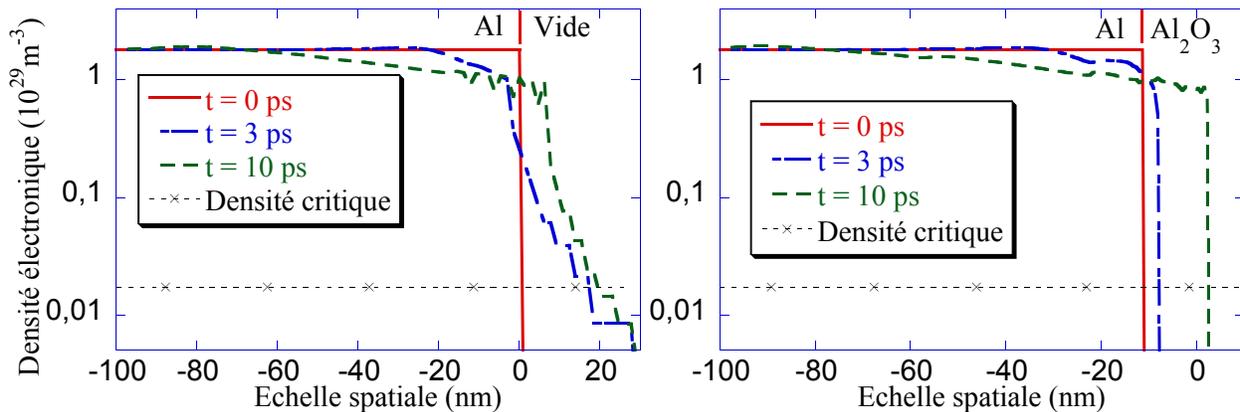
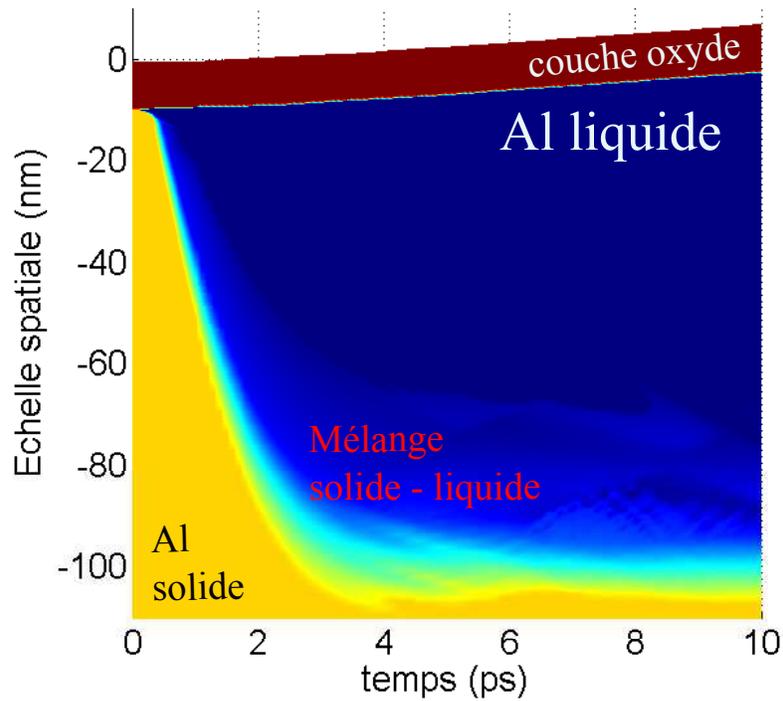
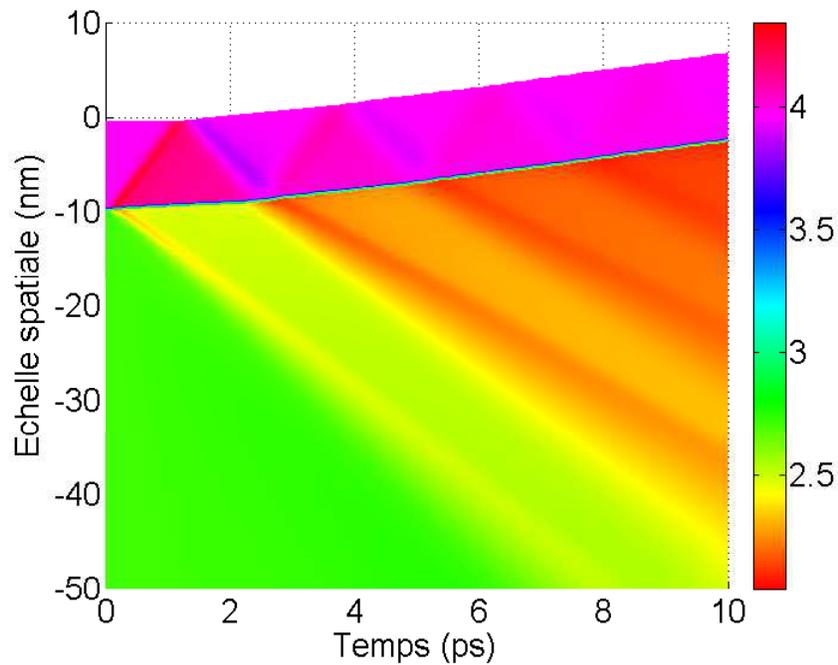


FIGURE 4.8 – Profils de densité électronique issus d'une simulation ESTHER sur une cible d'aluminium (gauche) et comprenant une couche d'oxyde de 10 nm (droite) irradiée par un laser à 800 nm à une fluence de  $0.5 \text{ J/cm}^2$ .

Le fait que nous obtenions des longueurs de gradient nulles à la densité critique indique que l'échantillon reste sous forme condensée. Cette constatation peut paraître surprenante car, en supposant une absorption de 10 à 20% de l'énergie incidente, l'estimation faite au §1.5 indique que la température électronique est de l'ordre de 5 eV à la surface de la cible à la fin de l'impulsion pompe. À cette température, la pression électronique est bien supérieure à la pression de cohésion du matériau [73] et un processus d'ablation devrait être observé. Pour comprendre ce comportement, nous avons réalisé des simulations avec le code de simulation à 2 températures ESTHER (voir Annexe A). Les fréquences de collisions en régime hors équilibre sont décrites par l'intermédiaire du modèle mis sous la forme de l'équation (1.63). Les



(a) Diagramme de phase.



(b) Densité massique ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )

FIGURE 4.9 – Diagramme d'état et densité massique issu d'une simulation ESTHER sur une cible d'aluminium comprenant une couche d'oxyde de 10 nm irradiée par un laser à 800 nm à une fluence de  $0.5 \text{ J}/\text{cm}^2$

simulations faites sans couche d'oxyde montrent une expansion de type plasma avec un gradient non nul à la densité critique (voir figure 4.8 de gauche). En revanche, lorsque la couche d'oxyde est introduite, elle joue le rôle de bouchon en empêchant la matière de se détendre et le profil de densité électronique entre l'oxyde et l'aluminium reste raide (voir figure 4.8 de droite). L'aluminium reste alors sous forme condensée (liquide) comme nous pouvons le voir sur le graphique de la figure 4.9(a) représentant le diagramme d'état. Comme la couche d'oxyde est transparente aux longueurs d'onde de sondes et ne subit pas de dommage suite à l'irradiation du laser de pompe, la couche d'oxyde est spectatrice lors de l'interaction : la densité électronique dans cette couche reste nulle. L'aluminium derrière celle-ci reçoit l'énergie laser et subit une expansion sur-dense, elle met sous pression la couche d'oxyde et la pousse en se détendant. Bien qu'a priori néfaste pour les mesures expérimentales, la couche d'oxyde joue donc ici un rôle majeur en empêchant la formation d'un plasma sous-dense en face avant. La réflexion de la sonde s'effectue sur une interface raide et les mesures de déplacement peuvent s'effectuer directement à partir des mesures de  $\beta_\phi$ , sans correction additionnelle.

Sur la figure 4.11 sont tracés les déplacements de la surface obtenus par le biais de l'équation (4.2). On y distingue 3 étapes :

1. Durant les premières 5 ps, l'interface Al – Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> se déplace vers le vide à une vitesse de 0.6 nm/ps et 1 nm/ps à 0.5 J/cm<sup>2</sup> et 1 J/cm<sup>2</sup> respectivement.
2. Ensuite, le mouvement ralentit durant les 10 ps et 5 ps suivantes à 0.5 J/cm<sup>2</sup> et 1 J/cm<sup>2</sup> respectivement.
3. Enfin, la surface évolue à vitesse constante : 0.1 nm/ps à 0.5 J/cm<sup>2</sup> et 0.4 nm/ps à 1 J/cm<sup>2</sup>.

Ce ralentissement n'est pas reproduit par la simulation ESTHER. Il pourrait s'expliquer par un transport thermique radial qui diffuserait l'énergie autour de la tache focale. En effet, cet effet à 2 dimensions n'est pas pris en compte dans la simulation. On estime l'importance de ce transport radial en comparant les ordres de grandeur. La tache focale mesure 50  $\mu$ m FWHM et l'épaisseur de peau du laser de pompe est d'un dizaine de nanomètres. Il y a donc 3 ordre de grandeur entre le diamètre de la zone chauffée et son épaisseur. Par ailleurs, on étudie l'évolution spatiale de la température par une simulation ESTHER 15 ps après chauffage, temps au bout duquel le ralentissement de la vitesse de déplacement de l'interface est effectif. Comme présenté sur le profil de température de la figure 4.10, la zone chauffée mesure environ 250 nm, soit 2 ordres de grandeur en dessous de la dimension radiale de la zone chauffée. En supposant que le transport radial évolue de la même manière que le transport vers l'intérieur de la cible, on en déduit que ce transport est sans effet sur la mesure donc c'est pas à l'origine du ralentissement.

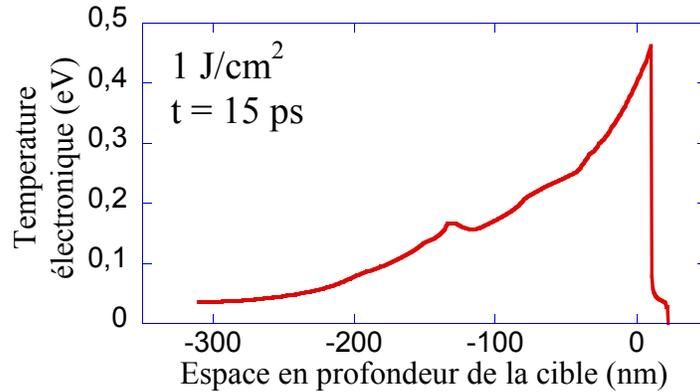


FIGURE 4.10 – Profil de température dans la profondeur de la cible issu d’une simulation ESTHER avec une fluence incidente de  $1 \text{ J/cm}^2$ , 15 ps après chauffage.

En revanche, la couche d’oxyde incluse dans la simulation (courbe (a) de la figure 4.11) est simplement spectatrice or la déformation de celle-ci implique des effets à 2 dimensions : en se déformant, elle offre une résistance mécanique fonction croissante de l’élongation de la couche. Avec l’expansion, la résistance augmente et réduit la vitesse d’expansion. Afin de reproduire le ralentissement de la vitesse d’expansion, la résistance mécanique de la couche d’oxyde a été introduite artificiellement dans la simulation 1D en assimilant la couche d’oxyde à une membrane. La pression dans l’aluminium déforme la couche et, comme cette dernière est fixe sur les bords de la zone de déformation, une force de traction est appliquée sur les bords. Soit  $\xi$  le déplacement d’un point dans la couche d’oxyde,  $r$  sa position par rapport au centre et  $T_r$  la valeur absolue d’une force de traction appliquée sur les bords de la couche rapportée à l’unité de longueur du bord. Quand cette force est appliquée, cela revient à appliquer une pression  $P_r = T_r \Delta \xi$  (où  $\Delta$  représente ici le laplacien) dans la couche d’oxyde [74].

En coordonnées cylindriques, on écrit  $\xi = d(R^2 - r^2)/R^2$  avec  $d$  la position de l’interface en  $r = 0$  et  $R = 40 \mu\text{m}$  le rayon de la déformation. On obtient ainsi :

$$P_r = -4dT_r/R^2 \quad (4.3)$$

En appliquant ce modèle avec  $T_r = 4 \text{ GPa} \cdot \mu\text{m}$ , on obtient la courbe (b) de la figure 4.11. La force de rappel devient trop importante avec l’élongation et la surface tend à revenir à sa position d’origine. En effet, lors de l’élongation de la couche d’oxyde, des micro-fissures sont susceptibles d’apparaître réduisant au cours du temps la force de traction  $T_r$ . Pour cette raison, nous introduisons une dépendance temporelle dans l’expression de la force de traction  $T_r = T_0 \exp(-t/t_i)$ . Dans nos simulations,  $T_0 = 4 \text{ GPa} \cdot \mu\text{m}$  et  $t_i$ , le temps caractéristique de la rupture de la couche d’oxyde, dépend de la fluence laser et vaut  $t_i = 13 \text{ ps}$  à  $1 \text{ J/cm}^2$  et  $t_i = 18 \text{ ps}$  à  $0.5 \text{ J/cm}^2$ . On obtient ainsi les évolutions temporelles présentées par les courbes (1) et (2). L’accord entre les points expérimentaux et la simulation est très bon. Notons que même les faibles oscillations de la surface sont reproduites. Elles sont visibles sur le

zoom de figure 4.11 de droite et correspondent aux aller-retours de l'onde de compression dans la couche d'oxyde, visibles sur le graphique de la figure 4.9(b). Le fait que ces ondes soient visibles montre en particulier d'une part la sensibilité du diagnostic et d'autre part l'adéquation des modèles utilisés ( $\beta_\phi = \phi^{(D)}$  et introduction d'une couche d'oxyde dans le code Esther).

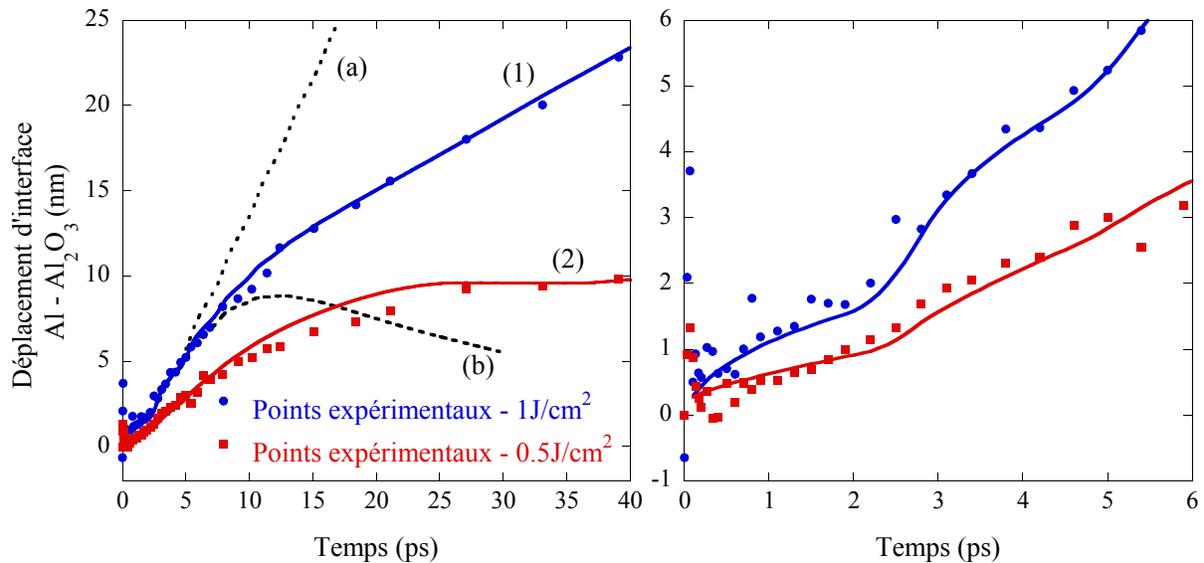


FIGURE 4.11 – Mesures expérimentales de la position de l'interface d'une cible d'aluminium irradiée à  $0.5 \text{ J/cm}^2$  et  $1 \text{ J/cm}^2$  comparées au code ESTHER.

En résumé, alors que phase et réflectivité dépendent à la fois de l'hydrodynamique et de la modification de  $\epsilon$ , nous avons démontré par l'utilisation simultanée des mesures en P et S que l'on pouvait séparer les différentes contributions. Ceci nous a permis de mesurer la position de la surface de l'aluminium avec une précision de l'ordre de 1 nm. La confrontation des résultats avec une simulation hydrodynamique a montré le rôle important que joue la couche d'oxyde à la surface de l'échantillon, pour les fluences modérées de notre étude ( $\leq 1 \text{ J/cm}^2$ ) :

- La couche d'oxyde joue le rôle de tampon, contribuant à préserver la cohésion de l'aluminium
- En se déformant sous la poussée de l'aluminium, elle exerce une force de rappel qui ralentit son expansion.

### 4.3 Mesure de fonction diélectrique de l'or dans le régime WDM hors équilibre.

Cette partie est consacrée à l'étude de la fonction diélectrique. Elle est un paramètre clef dans l'étude de la WDM. Sensible aux transitions inter et intrabande, elle est au cœur de

la compréhension des phénomènes de transport électronique et propriétés optiques. Mesurer la fonction diélectrique donne des informations sur la structure de bande, la température et le régime de collision du matériau sondé. Dans certaines conditions expérimentales, cette fonction est mesurable et peut s'interpréter par le biais de divers modèles.

Des mesures de fonction diélectrique faites sur l'or dans des conditions de WDM ont été rapportées par diverses équipes. En 2004, l'équipe de K. Widmann et A. Ng [22] étudie un film mince d'or auto-supporté d'une épaisseur de 28 – 32 nm. Pompé à 400 nm, l'échantillon est sondé à 800 nm avec une résolution temporelle de 150 fs et des mesures de réflectivité et de transmittivité sont effectuées. La sonde est à une incidence de 45° en polarisation S pour éviter, selon les auteurs, la complexité apportée par l'absorption résonante en polarisation P. Ils observent alors un état stationnaire de quelques ps durant lequel ils calculent les parties réelles et imaginaires de la conductivité optique par résolution des équations d'Helmholtz. Les mesures sont interprétées par le biais d'un modèle de Drude pour connaître l'évolution de la fréquence de collision et de la densité électronique en fonction de la densité d'énergie absorbée. Plus tard, une expérience intéressante également mise en place par A. Ng [23] réalisée sur le même type de cible visait à mesurer l'évolution temporelle de la fonction diélectrique sur une gamme spectrale étendue, de 1.5 à 2.7 eV. De la même manière mais sur spectre large, réflectivité et transmittivité de l'échantillon sont mesurées. La fonction diélectrique est ensuite calculée par intégration des équations d'Helmholtz dans une couche de plasma homogène n'ayant pas de gradient sur les bords. Les fonctions diélectriques mesurées montrent 2 zones, une pour des énergies de photons sous 2.3 eV gouvernée par les transitions intrabandes et une au dessus gouvernée par les transitions interbandes. Un modèle de Drude est utilisé pour interpréter la zone 'Drude-like' et temps de collision et densités électroniques en sont déduits pour plusieurs énergies absorbées et éventuellement plusieurs délais de sonde. Selon les auteurs, les résultats sont en bon accord avec l'expérience décrite plus haut. La transition interbande est ensuite discutée de manière qualitative par  $\epsilon_i(\omega)$ , qui subit un décalage vers les basses énergies. La méthode que nous proposons, basée sur les mesures simultanées des polarisations S et P donne une information complémentaire. Elle permet de s'assurer de la pertinence des mesures lors du calcul de  $\epsilon$  grâce à la relation  $R_p = R_s^2$ . Néanmoins, les résultats ne sont pas directement comparables car nos expériences sont réalisées sur cibles épaisses et non sur de fins échantillons auto-supportés. La conduction thermique est susceptible de jouer un rôle non négligeable dans notre cas.

### 4.3.1 Présentation des résultats

Les mesures de réflectivités en fonction du temps mesurées par la sonde (400 nm et 800 nm) au centre de la tache focale de la pompe (800 nm, indépendamment de la sonde) pour des

fluences allant de  $0.3 \text{ J/cm}^2$  à  $3.3 \text{ J/cm}^2$  sont présentées sur les figures 4.12 et 4.13. Nous voyons clairement apparaître une différence importante sur les réflectivités aux 2 longueurs d'onde de sonde présentées : la réflectivité relative est toujours inférieure à 1 pour la sonde de 800 nm, et supérieure à 1 à 400 nm. Ceci illustre la différence d'évolution des transitions intrabandes et interbandes lorsque l'on chauffe le matériau. En effet, la sonde à 800 nm n'est sensible qu'aux transitions intrabande, alors qu'à 400 nm elle est sensible aux transitions intrabande et interbande. Les transitions intrabandes, représentatives des électrons de conduction, augmentent avec la température électronique via la fréquence de collision. À l'inverse, les transitions interbandes semblent diminuer lorsque l'on chauffe le matériau.

À faible fluence ( $0.3$  et  $0.6 \text{ J/cm}^2$ ), les signaux varient brutalement lorsque la température électronique augmente, puis leurs évolutions s'inversent progressivement alors que la température électronique décroît dans la zone sondée (proche de la surface), à cause du transport thermique vers l'intérieur de la cible.

À fluence plus élevée ( $1$  et  $3.3 \text{ J/cm}^2$ ), l'inversion de tendance après la variation brutale initiale est moins nette ou même absente (voir les signaux en phase polarisation S à  $3.3 \text{ J/cm}^2$ ).

Afin de déterminer si ce comportement différent est intrinsèque au matériau ou dû à l'hydrodynamique, nous allons examiner les valeurs de  $\beta_\phi$  et  $\beta_r$ . Sur la figure 4.14 sont présentées les évolutions temporelles des quantités  $\beta_\phi$  et  $\beta_r$  pour les mesures des figures 4.12 et 4.13. Pour des raisons de clarté, seules les valeurs pour la sonde à 800 nm sont présentées, mais les évolutions à 400 nm sont tout à fait semblables. À  $0.3 \text{ J/cm}^2$  et  $0.6 \text{ J/cm}^2$ ,  $\beta_\phi$  et  $\beta_r$  restent très proches de 0 et de 1 respectivement (les écarts restent inférieurs à 20 mrad en phase et à 2% en réflectivité), ce qui signifie que la surface d'or reste raide et immobile. En revanche, à  $1 \text{ J/cm}^2$  et  $3.3 \text{ J/cm}^2$ , ces quantités s'écartent largement de 0 et 1. Contrairement aux 2 cas à plus basse fluence, la cible passe ici à l'état liquide dans les temps de notre mesure ce qui conduit à une hydrodynamique plus développée.

Remonter à une valeur réaliste de  $\epsilon$  dans la zone chauffée à partir de nos mesures suppose de corriger celles-ci de la contribution de l'hydrodynamique en tenant compte des différents mécanismes décrits au §3.2 pour en déduire les valeurs de phase et réflectivité imputables uniquement à la modification de  $\epsilon$  dans le matériau. Cette démarche reposerait sur la connaissance d'un certain nombre de paramètres (température électronique pour déterminer la gaine électronique [63], forme du gradient d'une éventuelle expansion type plasma, fonction diélectrique du matériau sous forme gazeuse...) que nous ne connaissons pas a priori. Cela représente une tâche très complexe que nous n'avons pas pu réaliser au cours de cette thèse. Par exemple, à  $3.3 \text{ J/cm}^2$ , les signaux montrent une évolution bien plus subtile qu'une simple ex-

4.3. MESURE DE FONCTION DIÉLECTRIQUE DE L'OR DANS LE RÉGIME WDM  
HORS ÉQUILIBRE.

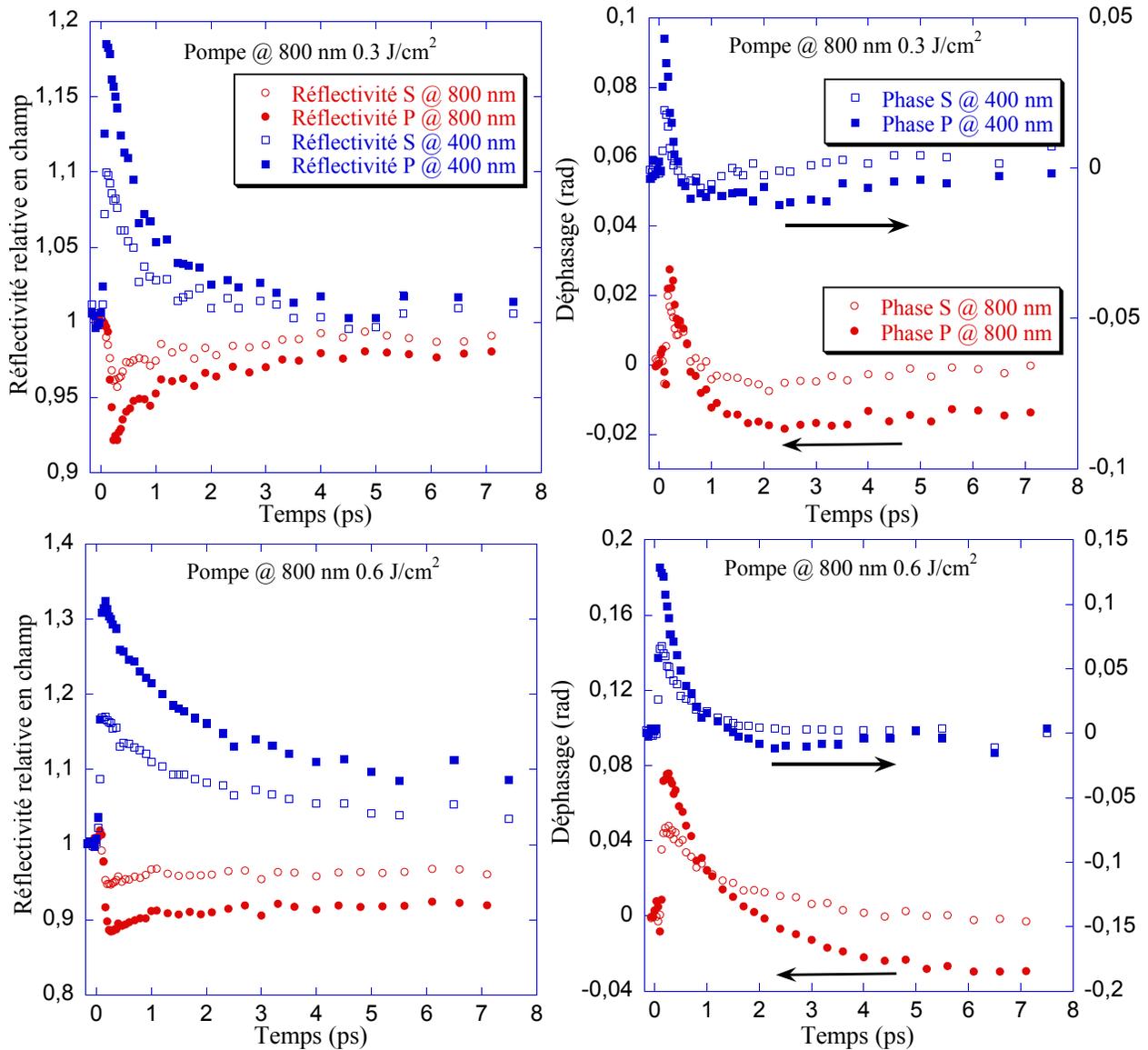


FIGURE 4.12 – Phase et réflectivité (relatif à la cible froide) de l'or en fonction du temps pour les fluence de 0.3 et 0.6 J/cm².

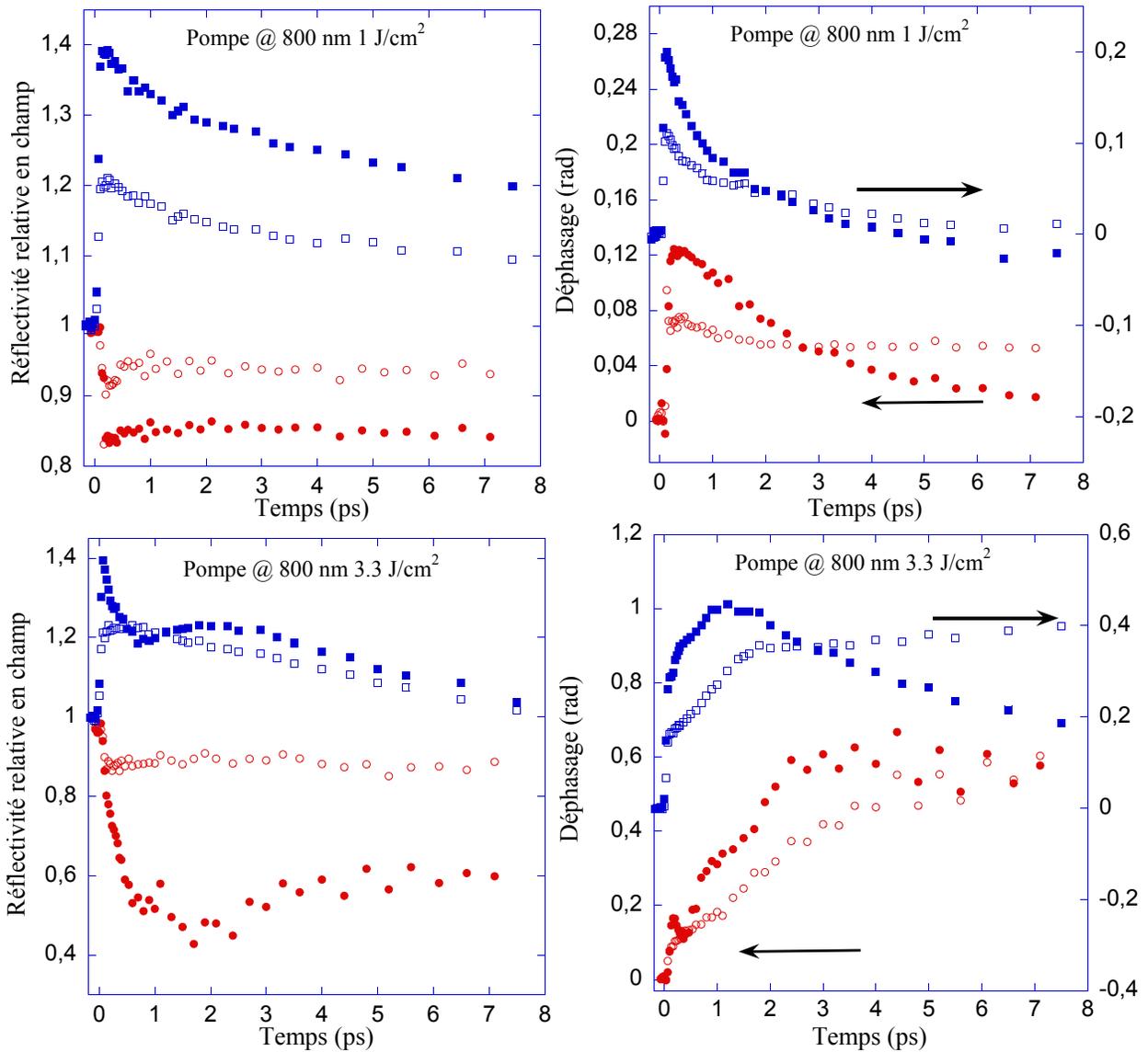


FIGURE 4.13 – Phase et réflectivité (relatif à la cible froide) de l’or en fonction du temps pour les fluence de 1 et 3.3 J/cm<sup>2</sup>. Voir figure 4.12 pour la légende.

pansion type plasma. De la même façon que ce qui avait été évoqué dans le cas d'une cible de cuivre au §3.3, l'évolution temporelle suggère une détente de type plasma qui s'accompagne au bout de quelques picosecondes d'une recombinaison électronique, se traduisant par une ré-augmentation de  $\beta_r$ .

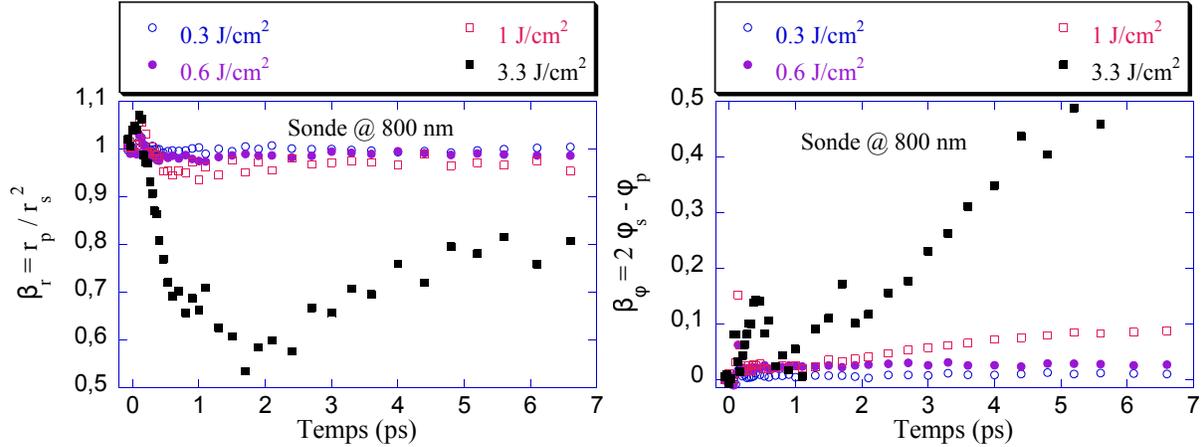


FIGURE 4.14 –  $\beta_r$  et  $\beta_\phi$  pour l'or en fonction du temps.

Une autre démarche serait d'utiliser un code pour effectuer une simulation intégrée et en vérifier l'adéquation avec les mesures expérimentales. Pour ce faire, nous avons utilisé le code Esther, dont nous présentons en figure 4.15 les résultats pour 2 fluences incidentes : 0.6 J/cm<sup>2</sup> et 3 J/cm<sup>2</sup> avec une sonde à 800 nm. Nous voyons que qualitativement, la simulation donne des résultats raisonnables. En revanche, il y a un net désaccord quantitatif : le code ne décrit pas suffisamment bien les quelques nanomètres de l'interface. En particulier les équations d'états des métaux sous forme gazeuse, dans des domaines de température de l'ordre de la température de Fermi pourraient manquer de pertinence et les électrons éjectés dans la gaine électronique ne sont naturellement pas pris en compte. Par ailleurs, nos mesures d'énergie absorbée ne sont pour le moment pas en accord avec le code.

Pour ces raisons, nous limiterons le calcul de fonction diélectrique à partir des mesures expérimentales uniquement à des cas où l'interface est proche d'être infiniment raide. En pratique, nous nous autoriserons à déduire  $\epsilon$  directement des relations de Fresnel lorsque  $-20 \text{ mrad} \leq \beta_\phi \leq 20 \text{ mrad}$  et  $0.98 \leq \beta_r \leq 1.02$ , et cela simultanément pour les 2 longueurs d'onde de sonde. Cela déterminera une barre d'erreur, comme présenté plus loin au §4.3.3.

Cette contrainte sur les valeurs de  $\beta_\phi$  et  $\beta_r$  nous amènera à distinguer 2 études : une étude sur l'évolution temporelle de  $\epsilon$  pour des fluences de 0.3 J/cm<sup>2</sup> et 0.6 J/cm<sup>2</sup>, et une étude pour toutes les fluences mais à un temps très court après le chauffage laser. En effet, pendant une centaine de femtosecondes après la fin de l'impulsion pompe,  $\beta_\phi$  et  $\beta_r$  restent dans des valeurs

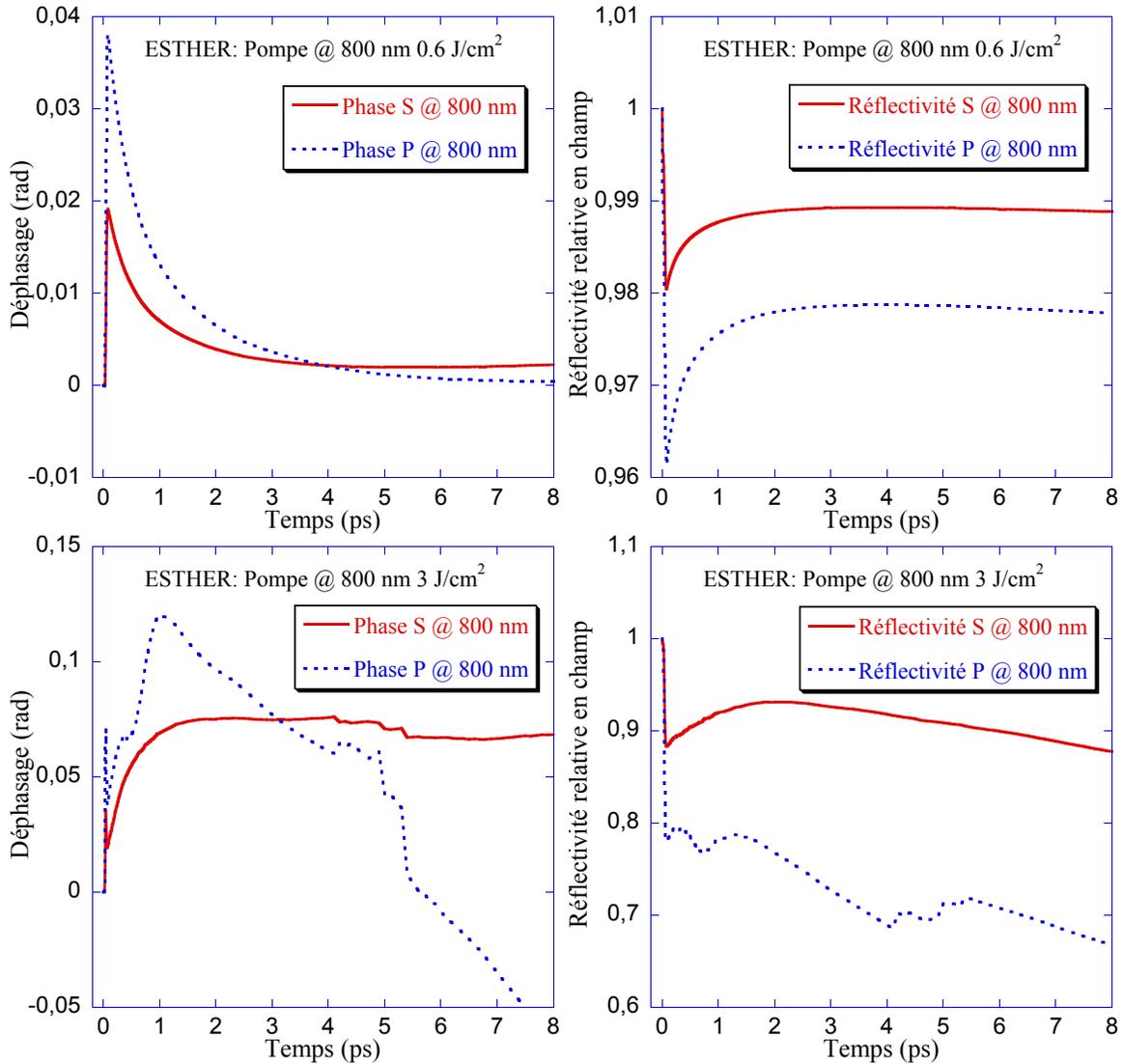


FIGURE 4.15 – Évolution des phases et réflectivités d’une sonde à 800 nm à 45° d’incidence sur une cible en or irradiée à 800 nm aux fluences de 0.6 J/cm<sup>2</sup> et 3 J/cm<sup>2</sup> simulées par le code Esther.

acceptables pour toutes les fluences de notre étude.

En résumé, nous rappelons la méthode que nous avons mise en place afin de calculer  $\epsilon$  à partir des phases et des réflectivités FDI :

1. Mesure simultanée de  $R_p^{(FDI)}$  et  $R_s^{(FDI)}$ . Suite à l’expérience, elles sont connues à la fois temporellement et spatialement. En effet, le spectromètre utilisé est imageur.
2. Vérification de la cohérence des valeurs par évaluation de  $\beta_\phi$  et  $\beta_r$ . Sans correction, le calcul de la fonction diélectrique n’est possible que si  $\beta_\phi$  est proche de 0 et  $\beta_r$  proche

de 1. Nous ne retenons que les cas où  $-20 \text{ mrad} \leq \beta_\phi \leq 20 \text{ mrad}$  et  $0.98 \leq \beta_r \leq 1.02$ .

3. Calcul des réflectivités chaudes : La mesure FDI est relative à la cible froide, on passe des mesures relatives aux mesures absolues par utilisation des valeurs d'indice optique froides et des équations de Fresnel.
4. Calcul de la fonction diélectrique chaude via l'équation  $\epsilon = \Omega_s/\Omega_p$  avec  $\Omega_{s,p} = (1 - R_{s,p})/(1 + R_{s,p})$  comme présenté au §3.2.1.

Quant à l'interprétation qui suit le calcul de  $\epsilon$ , bien que des codes de dynamique moléculaire classique ou quantique peuvent en calculer la valeur, nous nous contenterons dans le cadre de cette thèse des modèles de Drude et de Drude Lorentz pour interpréter nos mesures. Ils constituent une première approche et permettent une compréhension à la fois qualitative et quantitative des phénomènes physiques liés à l'interaction laser matière. De plus, cela permet d'extraire des quantités (densité, température et collisionnalité électronique) d'intérêt fondamental pour une description de la matière.

### 4.3.2 Retour sur le modèle de Drude Lorentz : Résolution

Le modèle de Drude Lorentz permet, à partir de paramètres physiques comme des densités électroniques, de fréquences de collision, des fréquences de résonances, de construire une fonction diélectrique, réponse spectrale d'un matériau. La forme utilisée, comme présenté au §1.2.5, est la suivante :

$$\epsilon = \epsilon_{r0}(\omega) - \frac{e^2}{m_e \epsilon_0} \left( n_c \frac{f_c}{(\omega^2 - i\nu_c \omega)} + n_d \sum_{i=3}^4 \frac{f_i}{(\omega^2 - \omega_i^2 - i\nu_i \omega)} \right) \quad (4.4)$$

L'enjeu est ici, à partir de la fonction diélectrique, de remonter à divers paramètres physiques qui la constituent. Si elle est connue à une énergie du spectre (typiquement 800 nm ou 400 nm), 2 paramètres sont ajustables. Si elle est connue à 2 énergies (800 nm et 400 nm), 4 paramètres seront ajustables.

#### 4.3.2.1 Résolution à 2 inconnues

La résolution analytique consiste à extraire depuis une mesure de  $\epsilon$  les paramètres qui composent l'équation (4.4). La fonction diélectrique est à valeur dans  $\mathbb{C}$ , mesurée à une seule longueur d'onde, deux informations sont connus :  $\epsilon_r(\lambda)$  et  $\epsilon_i(\lambda)$ . La résolution analytique n'est possible que si l'on ne recherche que 2 variables en fixant toutes les autres. Pour un laser de pompe à 800 nm, l'énergie est principalement déposée sur les électrons de conduction

et les quantités susceptibles de varier le plus sont celles présentes dans le terme de Drude. Les inconnues sont donc  $n_c$  et  $\nu_c$ . De plus, lors d'un chauffage avec un laser optique, les électrons de bande  $d$  passent en bande de conduction. Sachant qu'il y a conservation du nombre d'électrons, nous ajoutons la condition  $n_d + n_c = N_e n_i$  avec  $N_e = 11$ , le nombre d'électrons par atome dans les bandes  $s$  et  $d$  et  $n_i$  la densité ionique. Pour faciliter la résolution, la fonction diélectrique se réécrit :

$$\epsilon = \epsilon_{r0} - \frac{f_c \tilde{n}_c}{(1 - i\tilde{\nu}_c)} - (N_e \tilde{n}_i - \tilde{n}_c) \sum_{i=3}^4 \frac{f_i}{(1 - \tilde{\omega}_i^2 - i\tilde{\nu}_i)} \quad (4.5)$$

avec  $\tilde{n} = n/n_{cr}$ ,  $\tilde{\omega}_i = \omega_i/\omega$  et  $\tilde{\nu}_i = \nu_i/\omega$ . Gardons à l'esprit que  $\epsilon_{r0}$  dépend de  $\omega$ . Posons

$$\begin{cases} O &= O_r + iO_i &= \sum_{i=3}^4 \frac{f_i}{(1 - \tilde{\omega}_i^2 - i\tilde{\nu}_i)} \\ \bar{\epsilon} &= \bar{\epsilon}_r + i\bar{\epsilon}_i &= \epsilon - \epsilon_{r0} + N_e \tilde{n}_i O, \end{cases} \quad (4.6)$$

pour arriver à

$$\bar{\epsilon} = \tilde{n}_c \left( O - \frac{f_c}{(1 - i\tilde{\nu}_c)} \right). \quad (4.7)$$

Nous trouvons ainsi la valeur de  $\tilde{n}_c$  qui dépend encore de  $\tilde{\nu}_c$

$$\tilde{n}_c = \bar{\epsilon} \left( O - \frac{f_c}{(1 - i\tilde{\nu}_c)} \right)^{-1}. \quad (4.8)$$

Pour calculer  $\tilde{\nu}_c$ , l'équation (4.7) est séparée en un système de deux équations constitué des parties réelles et imaginaires.

$$\begin{cases} \frac{1}{\tilde{n}_c} &= \frac{1}{\bar{\epsilon}_r} \left( O_r - f_c \frac{1}{(1 + \tilde{\nu}_c^2)} \right), \\ \frac{1}{\tilde{n}_c} &= \frac{1}{\bar{\epsilon}_i} \left( O_i - f_c \frac{\tilde{\nu}_c}{(1 + \tilde{\nu}_c^2)} \right). \end{cases} \quad (4.9)$$

Après égalisation des deux membres de droite, il vient :

$$\begin{aligned} 0 &= a \tilde{\nu}_c^2 - b \tilde{\nu}_c + c \\ \text{avec } a &= O_i \bar{\epsilon}_r - O_r \bar{\epsilon}_i \\ b &= \bar{\epsilon}_r f_c \\ c &= a + \bar{\epsilon}_i f_c. \end{aligned} \quad (4.10)$$

Deux solutions existent. Après avoir calculé  $\tilde{\nu}_c$  numériquement des deux manières, nous trouvons que la solution permettant de retrouver la valeur du solide froid est

$$\tilde{\nu}_c = \frac{b + \sqrt{b^2 - 4ac}}{2a} \quad (4.11)$$

### 4.3.2.2 Résolution à 4 inconnues

Pour résoudre le système à 4 inconnues,  $\epsilon$  doit être connue à 2 énergies du spectre, de manière à vérifier 4 équations pour 4 inconnues. Les hypothèses sont similaires au cas à 2 inconnues mais 2 degrés de liberté sont ajoutés. Soucieux d'étudier les transitions interbandes, nous levons les contraintes sur les forces d'oscillateur  $f_3$  et  $f_4$  qui deviennent des variables du problème. Elles nous permettront de quantifier l'importance des termes relatifs aux transitions interbandes devant le terme de Drude. La résolution analytique de ce système s'avère difficile et il est préférable de résoudre le système de manière numérique. Depuis les mesures expérimentales, on calcule  $\epsilon_r^{(400)}, \epsilon_i^{(400)}, \epsilon_r^{(800)}$  et  $\epsilon_i^{(800)}$ . Ensuite, on calcule  $\epsilon$  dans les 2 longueurs d'onde via l'Eq 4.4 avec les 4 paramètres  $n_c, \nu_c, f_3$  et  $f_4$  pour obtenir  $\epsilon_r^{(DL400)}, \epsilon_i^{(DL400)}, \epsilon_r^{(DL800)}$  et  $\epsilon_i^{(DL800)}$ . L'erreur  $E$  est calculée suivant :

$$\begin{aligned}
 E_1 &= \left( \epsilon_r^{(400)} - \epsilon_r^{(DL400)} \right)^2 \\
 E_2 &= \left( \epsilon_i^{(400)} - \epsilon_i^{(DL400)} \right)^2 \\
 E_3 &= \left( \epsilon_r^{(800)} - \epsilon_r^{(DL800)} \right)^2 \\
 E_4 &= \left( \epsilon_i^{(800)} - \epsilon_i^{(DL800)} \right)^2 \\
 E &= E_1 + E_2 + E_3 + E_4
 \end{aligned} \tag{4.12}$$

Pour faire correspondre les valeurs expérimentales de  $\epsilon$  avec le modèle, l'erreur  $E$  est minimisée par un algorithme<sup>2</sup> par variation des 4 paramètres. Au bout d'un certain nombre d'itérations dépendant de la vitesse de convergence, l'algorithme converge vers une solution. Notons que l'utilisation de cette méthode de résolution avec des valeurs aléatoires de fonction diélectrique dénuées de sens physique ne permet pas la convergence de l'algorithme. Le modèle se doit d'être compatible avec la mesure. Typiquement, avec nos mesures expérimentales, l'erreur est de l'ordre de  $E < 10^{-26}$ , ce qui est largement satisfaisant et montre que le modèle est effectivement compatible.

### 4.3.3 Barres d'erreur sur le calcul de $\epsilon$

Concernant les barres d'erreur, leurs estimations est une opération délicate. Il y a en premier lieu l'incertitude statistique liée au dispositif expérimental. Phase et réflectivité sont connues avec une précision inférieure à 1 mrad sur la phase et inférieure à 1% sur la réflectivité. Sur une série issue d'un scan temporel par exemple, cette erreur statistique sera différente d'une mesure à la suivante, elle se répercutera sur chaque point du scan. Cette erreur statistique s'évalue en appréciant la dispersion des résultats. En pratique, nous sommes naturellement sensibles à cette erreur mais elle ne constituera pas la source d'erreur principale.

---

2. On utilise la fonction `fminsearch` de Matlab

Nous trouverons un deuxième type d'erreur qui n'est pas statistique mais de nature systématique. Par définition, contrairement à l'erreur statistique, réaliser à plusieurs reprises la même mesure ne réduit pas la barre d'erreur qui en est issue. Particulièrement deux sources en sont à l'origine :

- La mesure expérimentale repose sur un certain nombre d'hypothèses liées au principe de la mesure. Bien que nous ayons pris soin de les maîtriser au mieux, certaines erreurs peuvent en découler. Nous trouverons par exemple la qualité de l'imagerie (mise au point, aberrations...), le problème de mélange de polarisation entre autres.
- Sur la mesure de fonction diélectrique, existe également une deuxième source d'erreur directement liée à la physique du phénomène que l'on souhaite étudier. Par exemple, une source d'erreur systématique peut venir d'une expansion sous dense. L'information recueillie par la sonde est intégrée sur son chemin optique et il est important de savoir dans quelle mesure l'effet de la détente domine l'évolution de la fonction diélectrique mesurée [75].

Soucieux de mesurer la fonction diélectrique, nous avons vu que son calcul par voie analytique ne peut se faire de manière certaine que si l'équation  $R_p = R_s^2$  est satisfaite. Si l'erreur expérimentale sur  $\beta_\phi$  et  $\beta_r$  est supérieure à celle autorisée par l'erreur statistique (1 mrad sur la phase et inférieur 1% sur la réflectivité), alors l'erreur systématique est présente. Par nature, elle se corrige si sa provenance est suffisamment maîtrisée mais en pratique, il nous sera difficile de la corriger et l'on acceptera de faire passer cette erreur systématique en erreur statistique. De cette manière, une partie de l'information est perdue et les barres d'erreur sont plus importantes. Comme présenté au §4.3.1, on acceptera de calculer  $\epsilon$  depuis les mesures expérimentales lorsque les erreurs seront typiquement de  $-0.02 < \beta_\phi < 0.02$  et  $0.98 < \beta_r < 1.02$ . On suppose ensuite que les erreurs sur les phases et les réflectivités sont du même ordre que  $\beta_\phi$  et  $\beta_r$  donc, en définitive, les phases sont connues à 0.02 mrad près et les réflectivités à 2% près.

Les barres d'erreur seront évaluées sur certains points de mesures particuliers de manière à connaître l'ordre de grandeur. Nous présentons ici sur un exemple particulier la méthode mise en place. Supposons un cas parfait caractérisé par  $\phi_s = 0.05$  rad,  $\phi_p = 0.1$  rad,  $r_s = \sqrt{0.9}$  et  $r_p = 0.9$ . On suppose ensuite que les mesures répondent à une statistique gaussienne caractérisée par un écart type  $\sigma$ . Dans cette première étude, on suppose également que les

erreurs sur chaque variable ne sont pas corrélées. Les mesures deviennent alors :

$$\begin{aligned}
 \phi_s &= 0.05 + \text{random}(\sigma_\phi) \\
 \phi_p &= 0.1 + \text{random}(\sigma_\phi) \\
 r_s &= \sqrt{0.9} + \text{random}(\sigma_r) \\
 r_p &= 0.9 + \text{random}(\sigma_r)
 \end{aligned}
 \tag{4.13}$$

où  $\text{random}(\sigma)$  est une fonction aléatoire centrée sur 0 d'écart type  $\sigma$  avec  $\sigma_\phi = 0.02$  et  $\sigma_r = 0.02$ . Typiquement 10 000 jeux de 4 valeurs sont ainsi générés de manière aléatoire et, pour chaque jeu, nous calculons  $\epsilon$  avec les 3 équations (3.5), (3.6) et (3.7). On rappelle que la première utilise les informations relatives à la polarisation S et l'angle d'incidence. La deuxième utilise les informations dans les 2 polarisations sans l'angle d'incidence et la troisième utilise le rapport  $\rho = R_p/R_s$  et l'angle d'incidence. On construit ensuite les histogrammes présentés en figure 4.16 représentant les parties réelles et imaginaires de la fonction diélectrique calculées pour chaque équation.

En appréciant la dispersion des résultats issues de chaque équation, on s'aperçoit que l'équation (3.6) donne la dispersion la plus faible, avec un écart type de 6.8 sur  $\epsilon_r$  comme sur  $\epsilon_i$ . C'est la raison pour laquelle nous avons choisi cette équation pour les calculs de  $\epsilon$ . Les barres d'erreur sur les calculs de densité, température électronique et fréquences de collision seront appréciées de la même manière.

#### 4.3.4 Évolution temporelle pour des fluences modérées

Temporellement, les fonctions diélectriques calculées d'après nos mesures ne présentent pas l'état stationnaire durant 2 à 6 ps rapporté dans les références [22–24]. Dans les études de ces références effectuées sur cibles minces, en dehors de la perte d'énergie par effet radiatif, l'énergie est cantonnée dans la cible. Après l'état stationnaire, les auteurs rapportent que l'échantillon se désagrège. Dans notre cas, la conduction thermique est susceptible de répartir l'énergie vers l'intérieur de la cible avant que les ions se mettent en mouvement.

La résolution de Drude Lorentz à 4 inconnues à partir de nos mesures à 400 et 800 nm nous permet d'étudier l'évolution temporelle de la densité électronique et de la fréquence de collision en bande de conduction.

**Densité électronique** La densité électronique en bande de conduction est extraite de la résolution du modèle de Drude Lorentz à 4 inconnues dans laquelle  $n_c$  est isolée. Comme présentée sur la figure 4.17, l'évolution temporelle de la densité électronique en bande de conduction est évaluée jusqu'à  $t = 8$  ps. On y distingue clairement l'augmentation de la

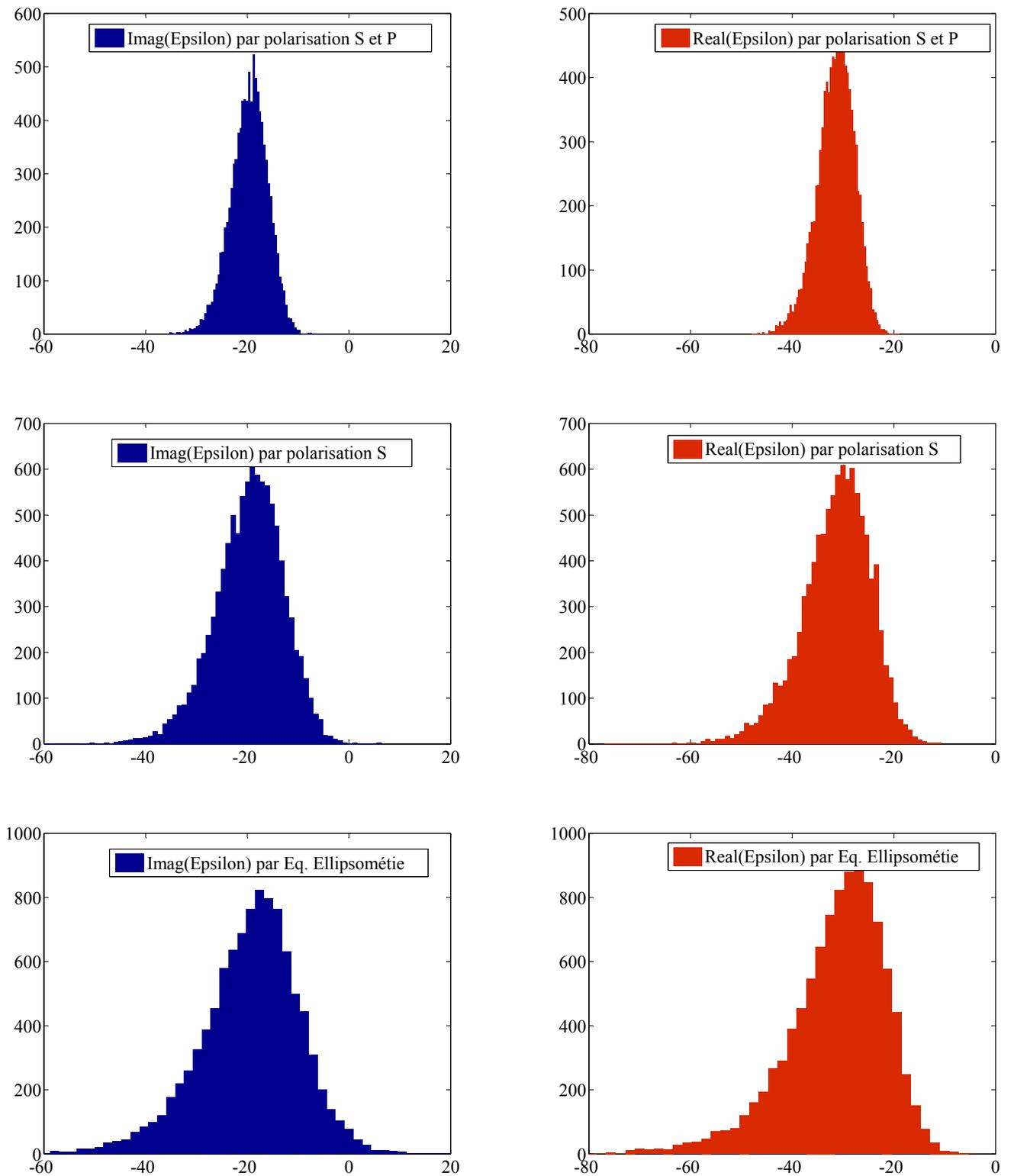


FIGURE 4.16 – Histogramme des parties réelle et imaginaire de la fonction diélectrique calculées par 3 équations différentes : Sur les légendes, Eq. (3.6) est notée 'polarisation S et P', Eq. (3.5) est notée 'polarisation S ' et Eq. (3.7) est notée 'Eq. Ellipsométrie'. Chaque histogramme correspond à la répartition des 10 000 points aléatoires.

densité électronique en bande de conduction avec l'élévation de la température. Cette augmentation se fait en moins de 100 fs, à la limite de résolution du diagnostic qui correspond également à la durée de la pompe. À  $0.3 \text{ J/cm}^2$ , la densité augmente de 6% juste après  $t_0$  alors que l'augmentation est plus brutale à  $0.6 \text{ J/cm}^2$  où elle augmente de 28%. Ensuite, par conduction thermique, l'énergie est dissipée vers l'intérieur de la cible. La température chute et la bande de conduction se vide à nouveau.

Quelques picosecondes après  $t_0$ , les résultats expérimentaux nous montrent une densité plus faible que celle de la valeur froide. Cela peut s'expliquer par le fait qu'une très faible expansion, de l'ordre de 1 nm, dilate le matériau et la densité chute. Une expansion de cet ordre est à la limite de résolution de notre diagnostic. En effet, une expansion de 1 nm se traduirait par  $\beta_\phi \simeq 0.01 \text{ rad}$ . Pour fixer les ordres grandeurs, si le matériau se dilate sur 1 nm en profondeur sur une distance de l'ordre de l'épaisseur de peau  $\simeq 20 \text{ nm}$ , alors la densité chute à 95% de sa valeur froide, typiquement les ordres de grandeurs de nos mesures.

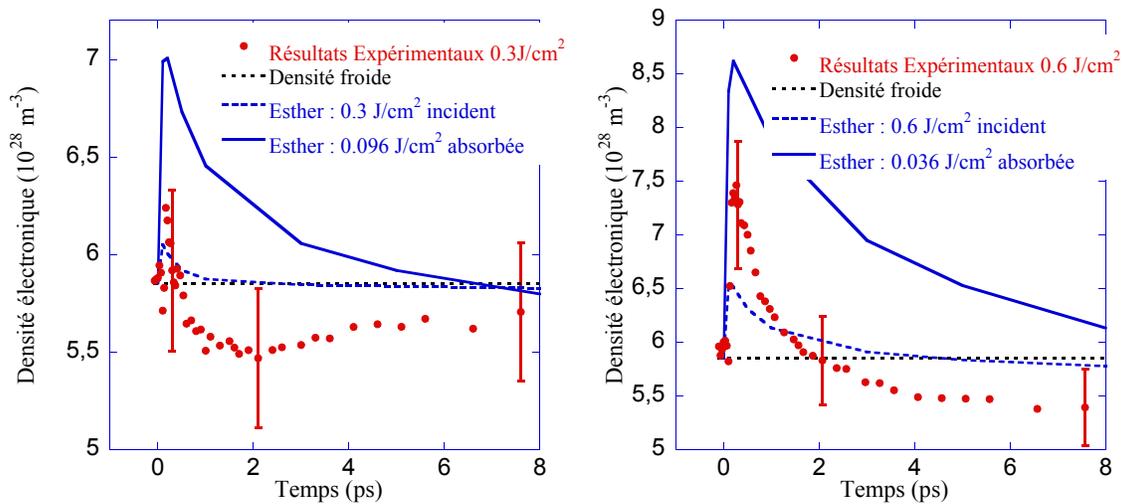


FIGURE 4.17 – Évolution de la densité électronique en bande de conduction en fonction du temps. Les résultats expérimentaux sont comparés aux simulations Esther.

Des simulations avec le code Esther ont été réalisées (figure 4.17 trait pointillé). Grâce à la modélisation de la bande  $d$  proche du niveau de Fermi [73], l'évolution globale de  $n_e$  est correctement reproduite : brutale élévation puis diminution progressive. Les valeurs de  $n_e$  données par Esther sont en accord à 20% près avec les valeurs expérimentales, mais sont systématiquement sous-estimées. Si l'on s'intéresse à l'absorption de l'énergie décrite par Esther, nous voyons qu'elle est également sous estimée (voir figure 4.18). Nous avons effectué plusieurs simulations Esther en augmentant l'énergie incidente, et retenu celles pour lesquelles la fluence absorbée coïncide avec celle que nous avons mesuré expérimentalement ( $36 \text{ mJ/cm}^2$

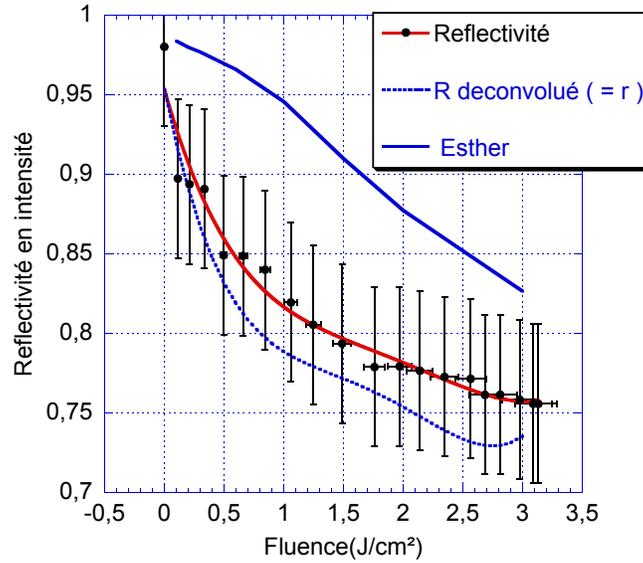


FIGURE 4.18 – Comparaison des mesures de réflectivité de la pompe avec le code Esther.

et  $96 \text{ mJ/cm}^2$ ). Les résultats sont indiqués en trait plein sur la figure 4.17. Nous voyons alors que :

- La densité électronique en bande de conduction initiale est plus élevée que celle de nos mesures.
- La décroissance se fait sur des temps plus longs.

Deux raisons pourraient expliquer ces désaccords :

- La bande  $d$  de l'or est modélisée de façon approximative dans Esther (elle correspond à 1 créneau dans la DOS qui ne varie pas en fonction de  $T_e$ ). Ceci pourrait amener à surestimer  $Z^*$  pour une valeur de  $T_e$  donnée.
- Une autre possibilité serait que le transport thermique de la surface vers l'intérieur de la cible soit sous estimé dans Esther. En particulier dans le code, le transport thermique est uniquement diffusif alors qu'un transport ballistique de la chaleur est souvent évoqué par certains auteurs [22, 23]. Sans en préciser la dépendance en température, certains auteurs rapportent des longueurs pouvant atteindre 100 nm pour les métaux nobles [76, 77]. Un transport thermique plus important entrainerait une température initiale de la surface plus basse - car l'énergie serait distribuée dans un volume plus important - et également un refroidissement plus rapide de la surface.

**Fréquences de collision** De la même manière, les fréquences de collision sont déduites des mesures expérimentales et extraites du modèle de Drude Lorentz résolu à 4 inconnues. Les résultats sont présentés en figure 4.19. On y distingue une brutale élévation juste après  $t_0$ , cette augmentation est liée à l'augmentation de la température électronique. Dans ce régime de température, les fréquences de collisions évoluent en  $T_e^2$  d'après l'équation 1.60. Une discussion plus approfondie de l'évolution en température de la fréquence de collisions sera réalisée dans la suite, lors de l'évolution résolue spatialement.

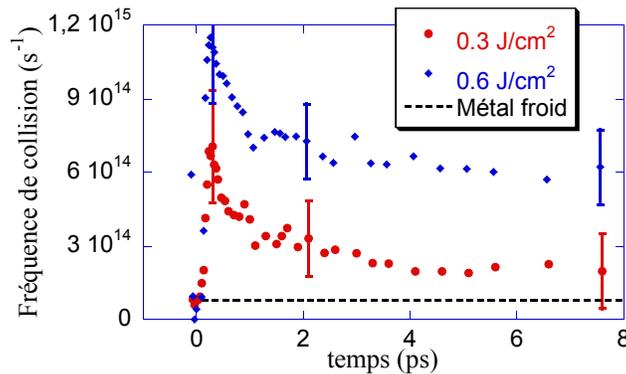


FIGURE 4.19 – Évolution temporelle des fréquences de collisions.

L'évolution temporelle du signal nous donne des informations sur la dynamique d'évolution temporelle de l'énergie dans la cible. Elle est majoritairement dominée par la conduction thermique donc la densité d'énergie dans le système évolue au cours du temps, elle n'est pas parfaitement connue à un temps donné. Elle dépend de la conduction thermique qui elle même dépend des fréquences de collisions, quantités que nous souhaitons mesurer. Par ailleurs, les fréquences de collisions dépendent également de la température ionique par le biais des collisions électrons-phonons. La résolution du modèle à deux températures régissant les évolutions temporelles des températures électronique et ionique devient nécessaire, il sort du cadre de cette thèse. Dans la suite, on étudie le système une centaine de fs après le dépôt laser, la température ionique est égale à sa valeur initiale.

#### 4.3.5 Évolution en fonction de la fluence incidente immédiatement après le chauffage.

Nous cherchons ici à connaître l'état du système en fonction de sa température électronique, quantité directement reliée à la fluence incidente. Pour la modifier, deux solutions s'offrent à nous :

- soit nous modifions l'énergie à l'entrée de l'enceinte,

– soit nous utilisons la résolution spatiale de nos mesures.

En pratique, nous couplerons les 2 méthodes. Les mesures issues du FDI sont résolues spatialement, le long de la fente du spectromètre. Les résolutions des lentilles d'imagerie étant largement meilleures que la taille de la tache focale de pompe (5 à 10  $\mu\text{m}$  de résolution devant 50  $\mu\text{m}$  de tache focale), on se propose d'utiliser cette dimension spatiale pour disposer d'une distribution en fluence sur un seul tir. De cette manière, chaque point de la fente est caractérisé par une fluence. Commençons par caractériser plus précisément la tache focale.

**Tache focale de la pompe** La tache focale a été imagée par un objectif de microscope. Sur l'image qui en est issue, sa surface n'est pas lisse mais présente des irrégularités liées aux défauts des densités optiques présentes devant la chip de la caméra. Pour minimiser ce bruit, on se propose d'obtenir une expression mathématique de la tache focale, il sera alors plus aisé de l'utiliser dans la suite pour associer une fluence en chaque point de la fente. Comme nous l'avons vu au §2.5.1, la tache focale est assimilable à une tache d'Airy. Sur la cible, son expression s'écrit :

$$I(x) = I_0 \left( \frac{2J_1(kx/2f_{\#})}{kx/2f_{\#}} \right)^2 \quad (4.14)$$

avec  $I_0$ , l'intensité au maximum de la tache,  $J_1$  la fonction de Bessel d'ordre 1,  $k = 2\pi/\lambda$  le nombre d'onde et  $f_{\#} = f/d$  l'ouverture du système optique qui focalise. En théorie, nous avons  $f_{\#} = 200/4 = 50$  pour une lentille de focale de 200 mm diaphragmée à 4 mm. Nous prendrons  $f_{\#} = 56.0$  pour reproduire parfaitement notre mesure. La différence vient du fait que la focale de la lentille est légèrement plus longue à 800 nm que celle prévue par le constructeur qui est donnée autour de 600 nm. On obtient alors le résultat présenté en figure 4.20. La tache focale est donc effectivement assimilable à une tache d'Airy.

**Présentation des mesures** Comme présenté au §2.4.6, si le temps caractéristique d'évolution de la réflectivité complexe est de l'ordre de la résolution temporelle de la sonde, phases et réflectivités ne sont pas constantes dans le spectre. Bien que le résultat puisse être une moyenne temporelle sur la résolution de la sonde, on préfère ici se placer à des temps de sonde pour lesquels la réflectivité est stable. On se place donc environ une centaine de fs après le dépôt laser. De plus, de cette manière, l'évolution hydrodynamique n'a pas eu le temps de se mettre en place. Seule une éjection d'électrons vers le vide peut venir perturber les signaux. On s'assure ensuite que l'on se trouve bien dans la situation nommée "Situation isochore" grâce au critère définit pas le bais de l'équation  $R_p = R_s^2$ .

Les mesures sont issues de 8 séries de mesure sur l'or. Chaque série est caractérisée par la fluence maximum au centre de la tache focale de la pompe et la longueur d'onde de la sonde.

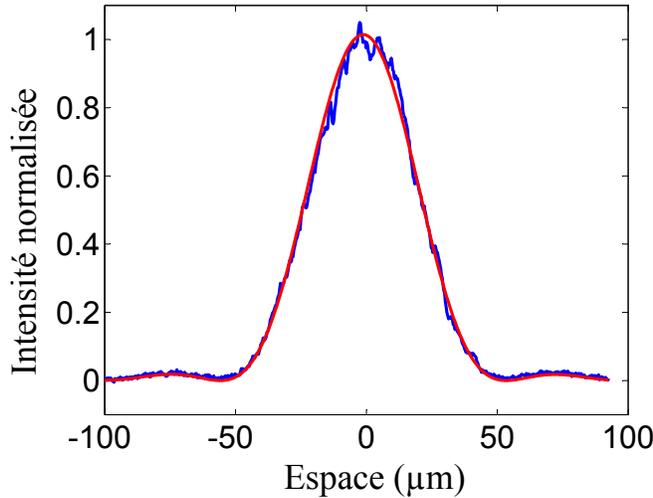


FIGURE 4.20 – Tache focale de la pompe et son fit.

Les 8 séries sont aux fluences de 0.3, 0.6, 1 et 3.3 J/cm<sup>2</sup> et sondées à 400 et 800 nm. Elles sont présentées en figures 4.21 et 4.22 et sont mesurées moins de 150 fs après chauffage. Sur les 8 séries représentées,  $\beta_r$  et  $\beta_\phi$  sont très proches de 1 et 0, ce qui signifie que nous sommes dans une situation isochore. L'expansion est ici négligeable et le calcul de fonction dielectrique se fait analytiquement. L'interprétation de ces signaux sera faite dans la suite par l'intermédiaire du modèle de Drude Lorentz. Avant cela, nous allons extraire les phases et réflectivité en fonction de la fluence laser.

Sur les signaux représentés, il y a redondance d'information. Chaque courbe spatiale est assimilable à une distribution du signal en fonction de la fluence laser. Par exemple, sur la série à 3.3 J/cm<sup>2</sup>, la fluence au centre de la tache est effectivement de 3.3 J/cm<sup>2</sup> mais les bords sont à une fluence moindre. Le long de l'échelle spatiale, toutes les fluences depuis 0 jusque 3.3 J/cm<sup>2</sup> sont représentées. En revanche, connaissant la forme de la tache focale de la pompe, spatialement, par exemple le passage de 0.3 à 0.6 J/cm<sup>2</sup> s'effectue sur les bords de la tache et sur une distance très faible égale à 4.4 μm ce qui est inférieur à la résolution de la lentille d'imagerie. Pour cette raison, nous utiliserons les informations de chaque tir laser dans leur gamme de fluence d'intérêt. De cette manière,

- la serie à 3.3 J/cm<sup>2</sup> couvrira les fluences de 1 à 3.3 J/cm<sup>2</sup>,
- la serie à 1 J/cm<sup>2</sup> couvrira les fluences de 0.6 à 1 J/cm<sup>2</sup>,

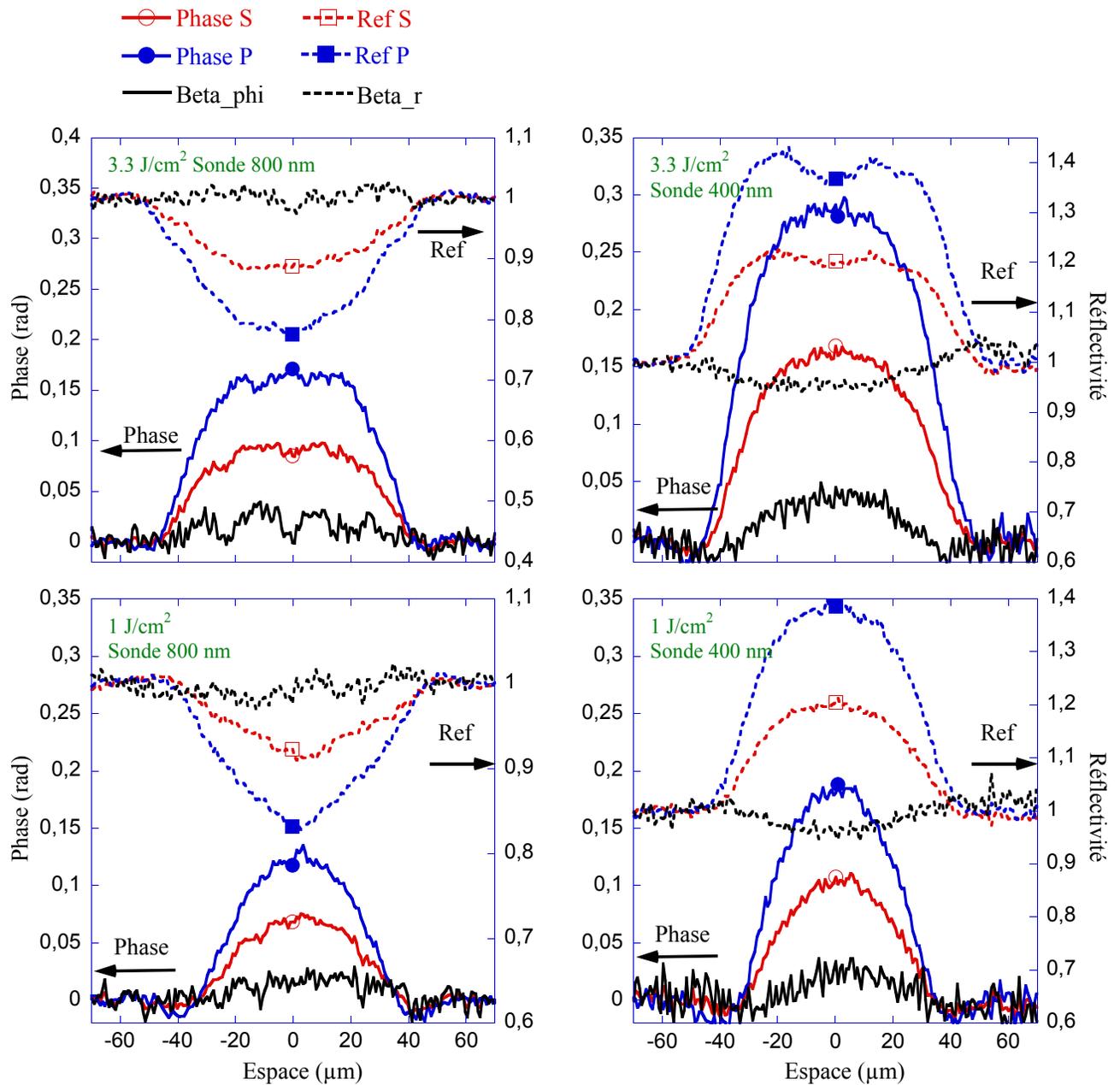


FIGURE 4.21 – Évolution spatiale des phases et réflectivités obtenues juste après dépôts laser ( $t < 150$  fs) sur une cible en or pour plusieurs fluences laser.

### 4.3. MESURE DE FONCTION DIÉLECTRIQUE DE L'OR DANS LE RÉGIME WDM HORS ÉQUILIBRE.

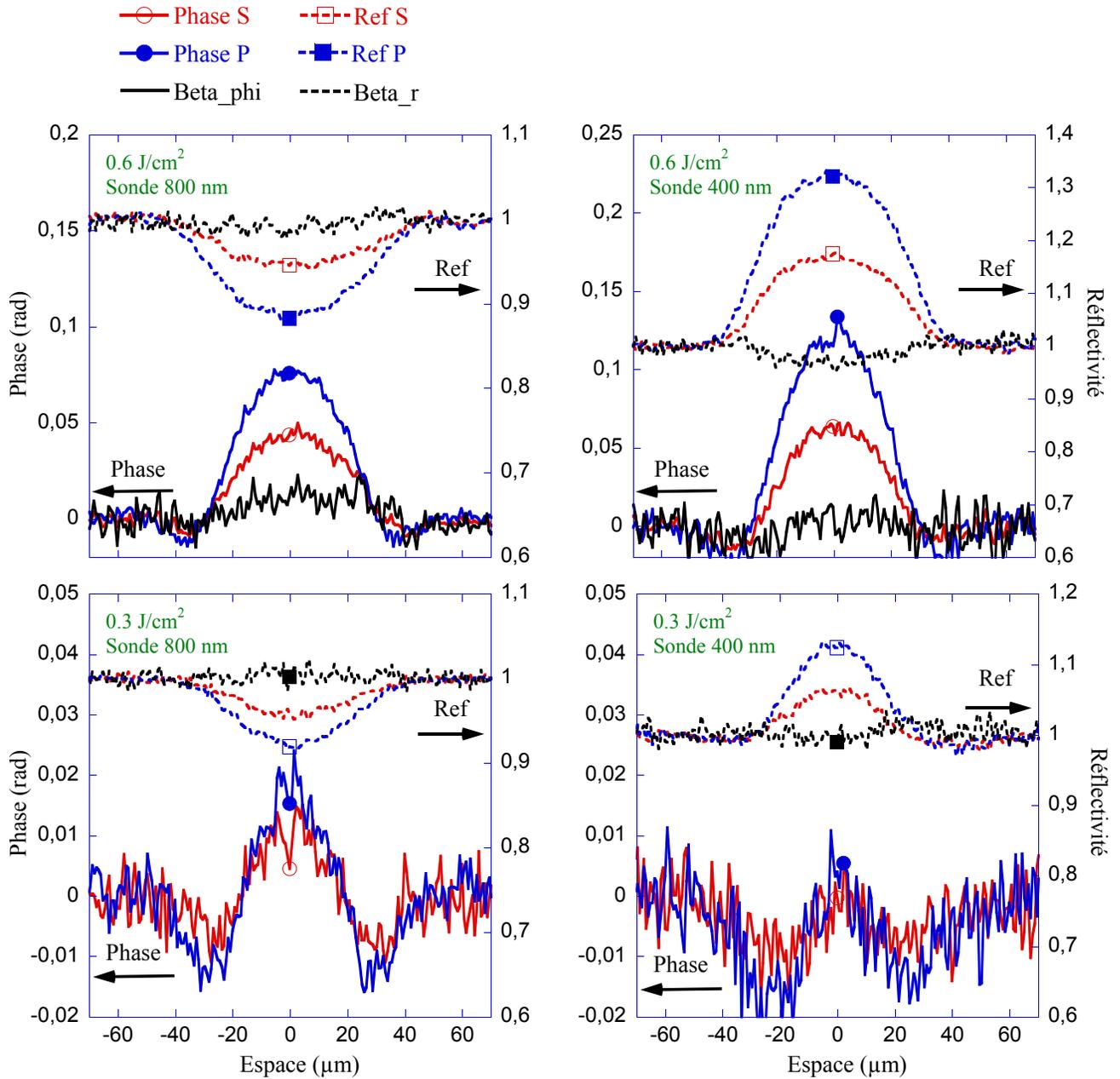


FIGURE 4.22 – Évolution spatiale des phases et réflectivités obtenues juste après dépôts laser ( $t < 150$  fs) sur une cible en or pour plusieurs fluences laser. Pour une meilleure lecture,  $\beta_\phi$  n'a pas été tracé à  $0.3 \text{ J/cm}^2$

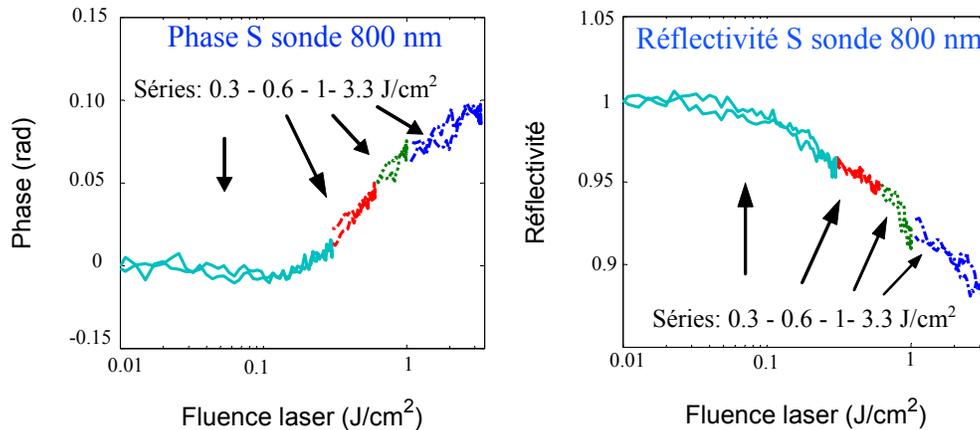


FIGURE 4.23 – Exemple de recouvrement des phases et des réflectivités de 4 séries différentes en fonction de la fluence laser incidente.

- la serie à  $0.6 \text{ J/cm}^2$  couvrira les fluences de  $0.3$  à  $0.6 \text{ J/cm}^2$ ,
- la serie à  $0.3 \text{ J/cm}^2$  couvrira les fluences de  $0$  à  $0.3 \text{ J/cm}^2$ ,

ce qui nous assure de rester au mieux en accord avec les résolutions des lentilles d’imageries. On associe ensuite à chaque position spatiale une fluence en utilisant le fit de la tache focale présentée sur la figure 4.20 puis nous utilisons chaque série dans leur gamme de fluence pertinente. En guise d’illustration, sont présentés sur la figure 4.23 les recouvrements. On n’aperçoit pas de discontinuité entre les différentes séries.

Les signaux des figures 4.21 et 4.22 sont symétriques par rapport au centre de la tache focale de la pompe, donc chaque information apparait 2 fois, de part et d’autre du centre. Il s’agit d’une deuxième source de redondance. C’est la raison pour laquelle chaque courbe est doublée sur la figure 4.23. Les deux courbes se rejoignent à la fluence maximum de chaque série. On fait donc une moyenne des 2 informations de part et d’autre du centre de la tache focale pour obtenir une information unique. Le recouvrement des séries et la moyenne sont réalisés pour les 8 séries ( 4 fluences maximum à 2 longueurs d’onde). On obtient ainsi l’évolution des phases et des réflectivités, en fonction de la fluence laser, juste après le dépôt d’énergie par la pompe, dans les 2 directions de polarisation (S et P) et à 2 longueurs d’onde de sonde.

On calcule ensuite la fonction diélectrique (et l’indice optique). Ses parties réelles et imaginaires sont présentées en figure 4.24. Rappelons, comme présenté au §1.2.1, que l’absorbance est directement reliée à  $\epsilon_i$ . À  $800 \text{ nm}$ ,  $\epsilon_i$  est décroissant (croissant en valeur absolue), ce qui est en accord avec une réflectivité mesurée décroissante (cf figure 4.23). La partie imaginaire de  $\epsilon$  est également décroissante à  $400 \text{ nm}$  ce qui n’est a priori pas intuitif car la réflectivité mesurée est supérieure à la valeur froide (cf figures 4.21 et 4.22). L’absorption s’effectue via

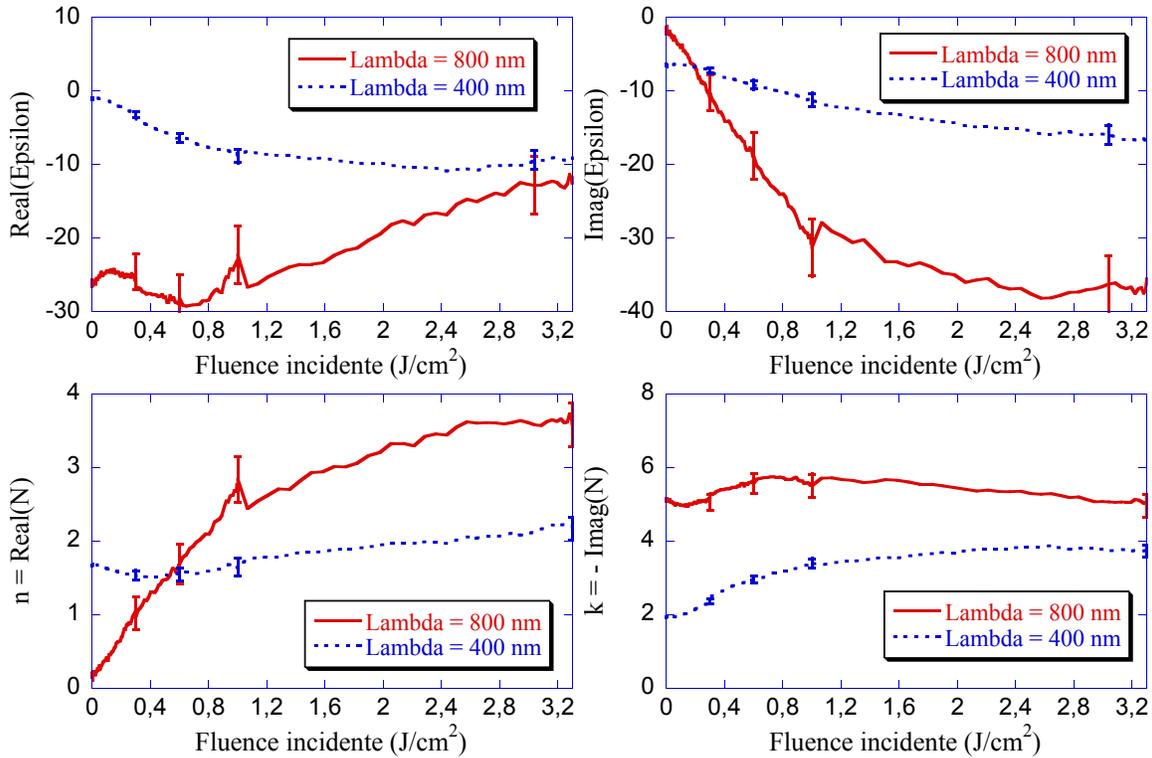


FIGURE 4.24 – Parties réelles et imaginaires de la fonction diélectrique et de l'indice optique en fonction de la fluence laser incidente à  $\lambda = 400, 800$  nm.

le champ transmis à l'interface  $E_t$  sur une épaisseur de peau  $\delta$  or,  $E_t$  et  $\delta$  dépendent à la fois de  $\epsilon_i$  et  $\epsilon_r$ . C'est la raison pour laquelle ce comportement observé sur  $\epsilon_i$  à 400 nm n'est pas incompatible avec une augmentation de la réflectivité. Dans ce cas, l'absorbance augmente alors que l'absorption diminue.

**Transition interbande** À 800 nm,  $\epsilon_i$  augmente d'un ordre de grandeur avec la fluence laser, ce qui est le signe d'un renforcement des transitions intrabandes. Pour distinguer si l'augmentation de  $\epsilon_i$  à 400 nm est due aux transitions intrabandes ou interbandes - puisque les 2 transitions peuvent intervenir à cette longueur d'onde - on réalise un fit sur les 4 inconnues  $n_c, \nu_c, f_3$  et  $f_4$  du modèle de Drude Lorentz. Bien que les auteurs de la référence [23] aient observé un décalage en énergie de la bande d'absorption, nous ne pouvons pas autoriser une telle modification dans notre fit puisque seulement 2 paramètres autre que  $n_c$  et  $\nu_c$  peuvent être modifiés. Les valeurs de nos forces d'oscillateur  $f_3$  et  $f_4$  ne doivent pas être prises comme des données intrinsèques du matériau, mais plutôt comme des indicateurs de l'efficacité des transitions interbandes à 400 nm. Suite à cette résolution numérique, on se propose de tracer sur le graphique de gauche de la figure 4.25 la contribution des transitions intrabandes et interbandes à la partie imaginaire de la fonction diélectrique. On s'aperçoit que la contribution intrabande augmente avec la fluence laser alors que la contribution interbande diminue. Elle

est de moins en moins efficace et le comportement de l'or à 400 nm tend vers un comportement 'Drude-Like'. Nous avons également tracé les différentes contributions à la partie imaginaire de la fonction diélectrique à 800 nm sur le graphique de droite de la figure 4.25. On y distingue le renforcement des transitions intrabandes.

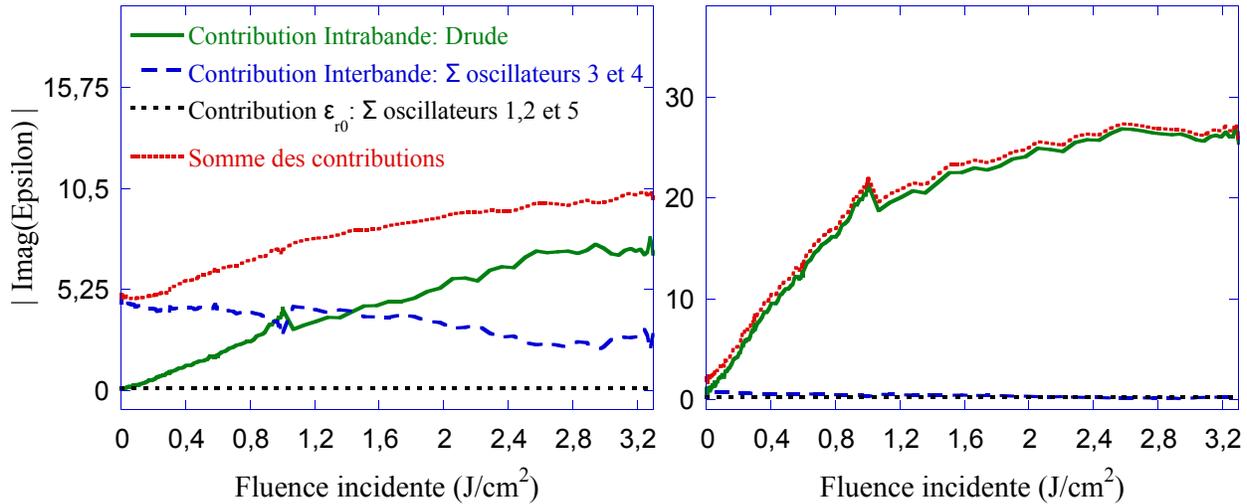


FIGURE 4.25 – Séparation des différentes contributions à la partie imaginaire de la fonction diélectrique à 400 nm (gauche) et à 800 nm (droite) écrite sous la forme de l'équation (1.52) en fonction de la fluence laser incidente. À 400 nm, la contribution intrabande domine sur la contribution interbande lorsque que la fluence est supérieure à  $1.5 \text{ J/cm}^2$ .

Les auteurs de la référence [23] ont mesuré la fonction diélectrique de 480 à 800 nm et ont observé un décalage vers le rouge de la transition interbande suite au chauffage. Nos résultats sont compatibles si l'on suppose que le décalage est suffisant pour que la transition soit moins efficace à 400 nm.

**Densité électronique en bande de conduction** Suite à la mesure de fonction diélectrique aux 2 longueurs d'onde, la densité électronique en bande de conduction est extraite du modèle de Drude Lorentz. Nous allons comparer 2 méthodes de résolutions. En effet, comme expliqué au §4.3.2, la densité est déduite du terme de Drude dans l'équation (4.4) mais le terme de Lorentz peut être constant ou variable selon les hypothèses que l'on se fixe. Parmi les 2 méthodes, nous trouverons

- la résolution à 2 inconnues depuis la mesure de  $\epsilon(\lambda = 800 \text{ nm})$ ,
- la résolution à 4 inconnues depuis les mesures de  $\epsilon(\lambda = 800 \text{ nm})$  et  $\epsilon(\lambda = 400 \text{ nm})$ .

Les résultats sont visibles sur la figure 4.26. On se rend compte, comme précisé durant l'étude temporelle de  $\epsilon$ , que les résultats issus des 2 méthodes donnent des résultats proches. Cela confirme que la transition interbande a peu d'influence sur les photons à 800 nm. En d'autre

mots, le terme de Drude est majoritaire devant le terme de Lorentz et un simple modèle de Drude peut être utilisé à 800 nm en première approximation.

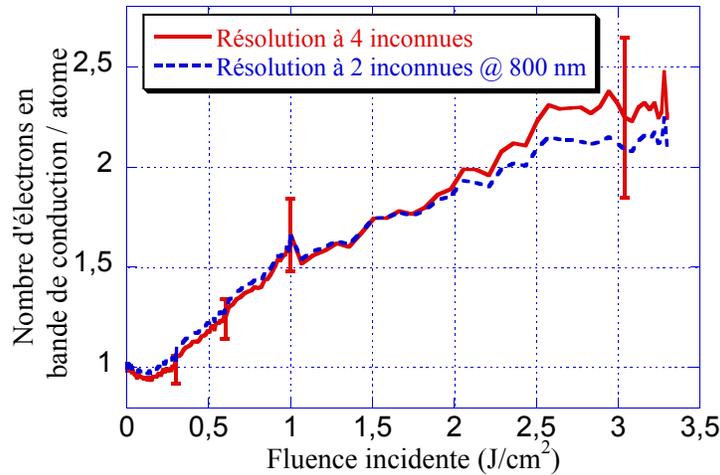


FIGURE 4.26 – Nombre d'électrons par atome en bande de conduction en fonction de la fluence laser incidente calculé par 2 méthodes différentes.

Comme attendu, la densité électronique en bande de conduction augmente avec la fluence laser. À basse fluence, elle est environ constante et égale à la valeur froide jusqu'à  $0.2 \text{ J/cm}^2$  puis entame sa croissance pour les fluences plus élevées. Ce décalage est dû à l'écart de quelques  $\text{eV}$  entre la bande  $d$  et le niveau de Fermi. Comme précisé au §1.1.2.2, la température doit être de l'ordre de  $0.3 \text{ eV}$  avant que le nombre d'électron en bande de conduction évolue.

**Température électronique** Pour évaluer la température électronique, nous disposons de 2 méthodes que nous allons confronter. Chaque méthode utilise des considérations différentes et font appel à diverses hypothèses.

- Méthode 1 : Une méthode pour estimer la température électronique du milieu consiste à utiliser la mesure de densité électronique obtenue par la résolution du modèle de Drude Lorentz. On associe cette variation de densité électronique à une variation de température électronique en couplant ces résultats aux résultats obtenus au paragraphe §1.1.2.2. Dans cette partie, nous avons intégré le produit de la DOS avec la distribution de Fermi Dirac pour obtenir l'évolution du nombre d'électrons en bande de conduction en fonction de la température. Ce calcul supposait, dans le calcul des DOS, une température ionique nulle. Il s'applique ici dans la mesure où les résultats sont issus de tirs laser réalisées une centaine de fs après chauffage.
- Méthode 2 : Une deuxième façon de procéder consiste à raisonner sur l'énergie absorbée.

Grâce aux mesures expérimentales d'absorption expliquées au §2.5.3, nous connaissons la quantité d'énergie déposée dans le système pour chaque fluence laser. En couplant ces résultats aux résultats obtenus lors du calcul de température en fonction de l'énergie absorbée expliqué au §1.5.2, on détermine ainsi une évolution en température électronique en fonction de la fluence laser incidente. Cette méthode ne prend pas en compte la conduction thermique ou un transport balistique d'énergie qui peut avoir lieu entre le début du dépôt d'énergie et l'instant de la mesure. Pour cette raison, on s'attend à ce que cette méthode surestime la température par rapport à la méthode 1.

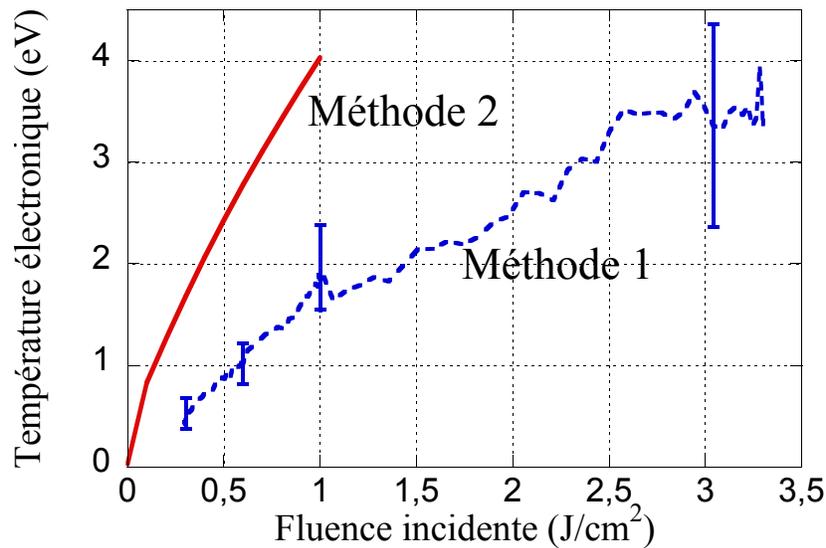


FIGURE 4.27 – Température électronique en fonction de la fluence laser incidente calculée par 2 méthodes différentes. La première est basée sur la résolution du modèle de Drude Lorentz depuis les mesures FDI, la deuxième est basée sur les mesures d'énergie absorbée.

En effet, comme présentée sur le graphique de la figure 4.27, la méthode 2 donne des températures supérieures à la méthode 1 donc la conduction thermique ou notamment un transport balistique peut éventuellement avoir joué un rôle. Par ailleurs, une hypothèse forte est intrinsèque à la méthode 2. Nous avons supposé que le dépôt laser s'effectuait dans un certain volume que nous avons estimé en calculant les épaisseurs de peau du laser de pompe pour plusieurs températures. Si ce volume est mal estimé, alors la température calculée devient plus un ordre de grandeur qu'une estimation quantitative. Pour ces raisons, nous pensons que la méthode 1 donne des résultats plus pertinents.

Notons que la méthode 1 est basée sur l'augmentation du nombre d'électrons en bande de conduction en fonction de la température. Or, la température doit être de l'ordre de l'eV (typiquement  $> 0.3$  eV) pour que la densité électronique évolue. En dessous, la densité est égale à sa valeur froide donc notre méthode est en dehors de son domaine de validité. C'est

la raison pour laquelle nous ne pouvons pas directement faire correspondre une température à une fluence incidente en dessous de  $0.3 \text{ J/cm}^2$ . Sachant que pour une fluence nulle,  $T_e$  doit être nulle, on interpole alors linéairement la température pour les fluences entre 0 et  $0.3 \text{ J/cm}^2$ .

Bien que les résultats des deux méthodes puissent être différents, les deux ordres de grandeurs concordent. Les températures associées à notre domaine d'étude sont effectivement de l'ordre de quelques eV, cela justifie certains choix que nous avons fait comme de l'utilisation de la distribution de Fermi Dirac pour la description des électrons et les fluences des lasers de pompe.

**Fréquence de collision** À ce stade, densité électronique et température électronique sont connues en fonction de la fluence laser en régime hors équilibre pour  $T_i$  nulle. Il nous reste à évaluer la fréquence de collision pour clôturer l'étude du terme de Drude de la fonction diélectrique. De la même manière que pour la densité électronique, elle est calculée par le modèle de Drude Lorentz résolu pour 4 inconnues en fonction de la fluence du laser incident. Ensuite, on associe à chaque fréquence de collision une température électronique via la densité électronique (Méthode 1 du §4.3.5) calculée dans les mêmes conditions. On obtient ainsi les résultats présents sur le graphique de la figure 4.28.

Nos résultats montrent une fréquence de collision évoluant de manière croissante avec la température. Ils sont en très bon accord avec le modèle de collision correspondant à l'équation (1.63), la différence n'excède pas un facteur 2 au maximum. Partant de la valeur froide  $\hbar\nu_e = 0.053 \text{ eV}$  ( $\nu_e = 8.05 \cdot 10^{13} \text{ s}^{-1}$ ) fixée par le terme de Drude (voir tableau 1.1), elle atteint  $\nu_e = 3.4 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$  à  $T_e = 3 \text{ eV}$ . En revanche, nos mesures ne correspondent pas parfaitement au modèle. La fréquence de collision a une tendance à augmenter de manière linéaire avec la température et non en  $T_e^2$  comme le prédit le modèle. Nous formulons 2 hypothèses pouvant être à l'origine de cette différence de comportement. Les fréquences de collisions électron-électron ont été décrites dans le cadre du modèle du liquide de Fermi. Dans ce régime intermédiaire, la présence de trous laissés en bande  $d$  par des électrons excités en bande de conduction est susceptible de jouer un rôle [78] et les fréquences de collision ne répondent pas comme prévu par la théorie. Un moyen pour s'affranchir de la présence de la bande  $d$  serait de travailler sur un métal simple comme l'aluminium. En revanche, notre méthode de mesure de température actuelle nécessite la présence d'une bande  $d$ . Sans elle, dans ce régime de température, la densité électronique en bande de conduction n'évolue pas et nous sommes dans l'impossibilité d'en déduire une température. Une autre hypothèse serait la suivante. Dans le calcul de la fréquence de collision effective, nous avons utilisé la règle de Matthiessen dans laquelle les probabilités de transitions électron-phonon et électron-électron s'ajoutent. Si les 2 mécanismes ne sont pas indépendants, alors cette règle est mise en doute.

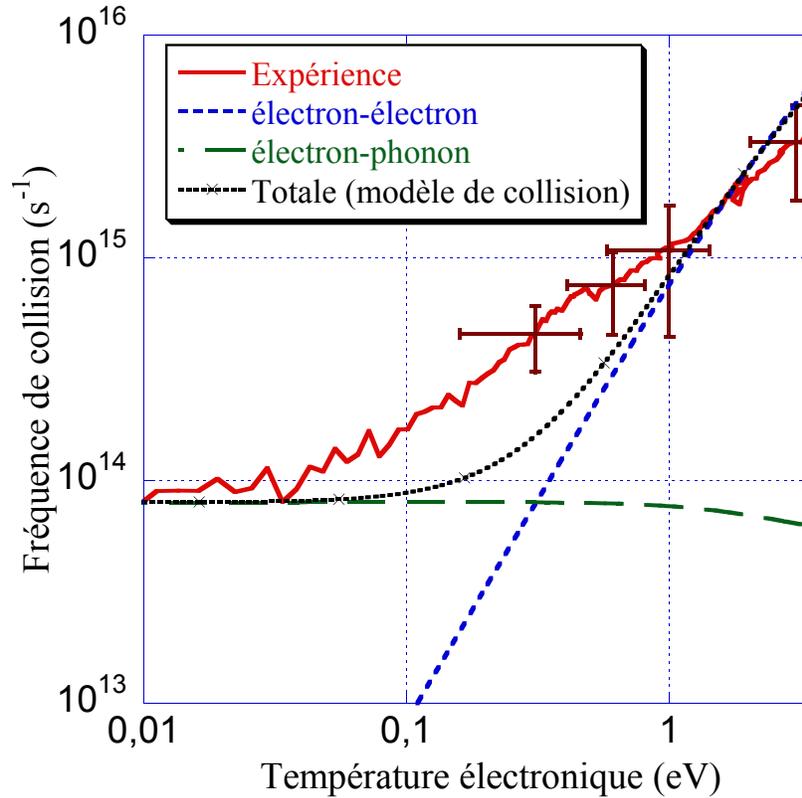


FIGURE 4.28 – Fréquences de collision en fonction de la température électronique comparée au modèle de collision décrit par le biais de l'équation (1.63) avec  $A_\nu = 3$  et  $k_s = 0.56$ .

Il serait intéressant de faire une étude similaire à plus haute température pour déterminer si ce comportement linéaire entre  $\nu$  et  $T_e$  se confirme ou si cette linéarité est uniquement présente dans ce régime intermédiaire entre le domaine dominé par la température ionique et le domaine dominé par la température électronique. Cette étude n'a pas pu être réalisée dans le cadre de cette thèse car, à plus haute fluence, l'hydrodynamique se met en place plus rapidement que notre résolution temporelle.

## Conclusion

Dans ce travail, un diagnostic interférométrique dans le domaine de Fourier a été mis en place afin de mesurer les phases et les réflectivités dans les deux directions de polarisation S et P d'une onde sonde en réflexion sur une cible chauffée. Les signaux issus ont été utilisés afin d'étudier l'hydrodynamique et la dynamique électronique hors-équilibre des métaux irradiés par laser à fluence modérée, autour de  $1 \text{ J/cm}^2$  avec une résolution temporelle de l'ordre de 50 fs.

Le diagnostic nommé FDI mis en place a été optimisé pour des mesures très fines de phase et de réflectivité. Il permet d'obtenir des résolutions inférieures à 10 mrad en phase et 1% en réflectivité. Pour ce faire, nous avons développé un porte cible stabilisé en rotation qui permet de minimiser les désalignements des cibles à quelques micromètres. Afin d'imager cette cible tout en conservant l'intégrité des quantités à mesurer durant le transport d'image de la cible au spectromètre, nous avons soigneusement choisi nos lentilles d'imagerie et leurs ouvertures pour minimiser les aberrations. Par ailleurs, pour réduire considérablement les aberrations chromatiques, le réseau présent dans le spectromètre a été choisi pour ne pas mesurer tout le spectre mais seulement une portion. Les résolutions des lentilles ont donc été ramenées à 5 et  $10 \mu\text{m}$  respectivement pour des sondes à 800 et 400 nm. Les déphasages mesurés ont ensuite été déduits avec un contrôle des conventions de signe pour un calcul de phase Doppler et de fonction diélectrique correct.

En régime dégénéré, les électrons ont été décrits par la distribution de Fermi-Dirac. Sous l'hypothèse réaliste que la bande de conduction des métaux étudiés puisse s'apparenter à celle d'un gaz d'électrons libres, connaissant la densité d'état de l'or pour plusieurs températures électroniques correspondant au domaine WDM, nous avons établi une relation entre densité électronique en bande de conduction et température électronique. Ensuite, la réponse optique du matériau a été étudiée par le biais des modèles de Drude et de Drude Lorentz. Le modèle de Drude permet de décrire les transitions intrabandes et une attention particulière a été portée sur la description des fréquences de collision en régime hors équilibre. Elle prend en compte

les contributions électron-phonon et électron-électron pour des températures électroniques inférieures à celle de Fermi et des températures ioniques inférieures à la température de fusion (le système reste en phase solide). Le modèle de Drude largement utilisé dans les codes d'interaction laser-matière a été complété par les équations des oscillateurs de Lorentz de manière à fournir une description phénoménologique des transitions interbandes. L'écriture de la fonction diélectrique qui en découle a été utilisée lors de l'interprétation de résultats expérimentaux.

Après un dépôt d'énergie par un laser de pompe sur une cible solide, à la fois la fonction diélectrique du matériau est modifiée et des processus hydrodynamiques se mettent en place. Dans cette thèse, nous avons défini un critère qui permet de s'assurer que les processus hydrodynamiques sont sans influence sur la mesure de fonction diélectrique. Si une expansion de type surdense apparaît, le critère ainsi défini permet de séparer les contributions diélectrique et hydrodynamique à la phase et à la réflectivité. Le déplacement de l'interface peut alors être suivi temporellement avec une précision de l'ordre de nanomètre. De plus, si l'expansion est de type plasma, nous avons mis en place une méthode pour estimer les longueurs de gradient de l'ordre de  $\lambda/1000$ .

Les expériences réalisées sur cible d'aluminium ont permis de démontrer la faisabilité de la méthode de mesure de déplacement de l'interface. De plus, ces déplacements ont été correctement reproduits par le code de simulation Esther. La simulation a également montré le rôle important de la couche d'oxyde présente à la surface de l'échantillon. Elle joue le rôle de tampon, contribuant à préserver la cohésion de l'aluminium et à maintenir un gradient raide à la surface de celui-ci. De plus, elle exerce une force de rappel qui ralentit l'expansion de l'aluminium après une dizaine de picosecondes. Ces résultats ouvrent des perspectives d'étude de relaxation de matériau sur des échelles très courtes de temps et d'espace, inférieures à 100 fs et de l'ordre du nanomètre.

Les expériences sur cibles en or ont montré d'une part le chauffage isochore - absence d'hydrodynamique dans les premières 100 femtosecondes - et d'autre part la faisabilité de la mesure de fonction diélectrique en régime hors-équilibre et son calcul depuis les mesures expérimentales par voie analytique. Nous avons en outre montré l'importance de vérifier la pertinence de la mesure par le biais de l'équation  $R_p = R_s^2$ . Les mesures de fonction diélectrique ont ensuite été interprétées par les modèles de Drude et de Drude Lorentz. Après résolution et applications aux mesures expérimentales, nous avons montré que les transitions intrabandes étaient renforcées alors que les transitions interbandes tendaient à diminuer avec la fluence laser pour une sonde à 400 nm. Par ailleurs, nous avons quantifié la population électronique en bande de conduction en fonction du temps et de la fluence laser et ainsi

confirmé le couplage de la bande  $d$  avec la bande de conduction. Cette estimation nous a permis de mettre en place une méthode de mesure de température électronique. Suite au chauffage, une centaine de femtosecondes après interaction, la température atteint 3.5 eV à une fluence de 3 J/cm<sup>2</sup> avec des impulsions pompes de 30 fs soit typiquement les ordres de grandeur en température du domaine WDM. Nous avons également mesuré la fréquence de collision électronique en fonction de la température. Elle est croissante avec la température dans le domaine WDM et est proche de la valeur prévue par la théorie. Néanmoins, elle présente une dépendance linéaire non prévue par les modèles généralement utilisés actuellement.

Ce faible écart à la théorie ouvre de nouvelles perspectives comme la mesure des fréquences de collision sur d'autres métaux dépourvus de bande  $d$ . Ce type de mesure peut servir d'expériences témoins afin d'estimer l'influence de la bande  $d$  quant aux collisions électron-électron. En effet, les électrons sont susceptibles de collisionner avec des trous laissés en bande  $d$  après chauffage [78]. Néanmoins, la méthode de mesure de température que nous avons mis en place serait difficilement applicable car elle repose sur la mesure de l'augmentation de densité électronique en bande de conduction, cette augmentation étant possible uniquement avec la présence d'une bande sous le niveau de Fermi. De plus, il serait intéressant de mesurer les fréquences de collision à fluence plus élevée afin d'observer si le comportement  $\nu_e \propto T_e^2$  se manifeste à plus haute température.

La méthode de mesure de température pourrait également être mise à profit pour étudier la conduction thermique sur des échantillons fins. Mesurer la température en face arrière pour plusieurs temps donnés et pour plusieurs épaisseurs de cible donnerait accès à la dynamique d'évolution dans le temps et dans l'espace du front thermique. Après résolution de l'équation de diffusion thermique, ce type d'expérience permettrait une étude du transport par des électrons balistiques dans le domaine WDM.

L'ensemble des travaux de thèse, comprenant la mesure de déplacement de la surface et la mesure de fonction diélectrique - ainsi que la séparation des contributions diélectrique et hydrodynamique - peut être utilisé pour étudier la dynamique de transition de phase non thermique solide-solide d'un matériau irradié par laser optique femtoseconde. Par exemple, le carbone, suite au chauffage, peut passer d'une forme amorphe (a-C) à différentes formes cristallines. Les méthodes pour synthétiser et caractériser ces formes ont motivé différentes études et promettent de nombreuses applications [79,80]. Les questions qui pourraient trouver une réponse seraient de savoir si le carbone amorphe subit une transition vers une phase cristalline, impliquant une modification de sa fonction diélectrique et de son volume. Par ailleurs, il serait possible d'étudier l'influence de la densité d'électrons libre sur la transition de phase.

Le FDI peut également être utilisé pour étudier le chauffage des électrons de cœur de cibles irradiées par rayon X. Nous avons participé à une expérience sur l'installation LCLS (laser à électrons libres) du centre SLAC (Californie, USA) visant à étudier l'homogénéité du chauffage de cibles d'argent de  $0.5 \mu\text{m}$  d'épaisseur. En mesurant les déphasages en face avant comme en face arrière, nous obtenons ainsi l'évolution volumique de l'échantillon. Comme les températures électroniques atteintes sont relativement élevées -  $10 \text{ eV} < T_e < 15 \text{ eV}$  - la vitesse de détente est suffisante pour que les effets du déphasage liés aux modifications diélectriques soient masqués par les effets de la détente. En effet, la sonde se réfléchit à la densité critique du plasma en détente et n'interagit pas - ou très peu - avec la matière dense derrière le plasma. L'évolution hydrodynamique peut être directement déduite des variations en phases, sans séparer les deux contributions comme nous l'avons fait dans cette thèse lors de l'interprétation des expériences sur l'aluminium. Les résultats de cette expérience sont encore en cours de traitement. Notons que sur une installation de ce type, à fluence plus modérée, des mesures de fonction diélectrique seraient envisageables.

## Le code ESTHER

Le code ESTHER [47, 59] mis à disposition par le CEA DAM est un code lagrangien 1D dédié à l'étude de l'interaction entre un rayonnement (laser, X, ions) et la matière (empilement de matériaux). Écrit en Fortran 90, il permet d'étudier l'évolution des matériaux irradiés depuis la phase solide vers une phase fluide (plasma, liquide, gaz...). Doté d'une importante base de donnée comprenant les équations d'états, indices optiques, conductivités thermiques, coefficients de transport, opacités et émissivités, il prend en compte l'hydrodynamique des matériaux fluides ou solides et le dépôt de l'énergie par la résolution des équations d'Helmholtz impliquant un comportement dynamique de la fonction diélectrique. Pour l'aluminium, les transitions interbandes effectives dans le domaine du proche infra-rouge et du visible influencent l'absorption de l'énergie laser. Leurs influences sur la fonction diélectrique ont été implémentées en utilisant le modèle simplifié proposé par Ashcroft et Sturm [47, 71]. Dans cette annexe, nous ne décrirons pas la code ESTHER dans sa globalité mais nous nous contenterons de décrire les modifications que nous y avons apporté.

La fonction diélectrique est décrite par un modèle de Drude dans lequel les fréquences de collision sont traitées par l'intermédiaire de la fréquence de collision effective

$$\nu_e^{-2} = (\nu_{e-ph} + \nu_{e-e})^{-2} + \nu_{cr}^{-2} + \nu_{sp}^{-2} \quad (\text{A.1})$$

comme présenté au §1.3.3. Elle peut être utilisée en régime hors équilibre et les coefficients qui la composent sont ajustés en fonction de la phase (solide, liquide..) dans laquelle la matière se trouve.

L'énergie laser est absorbée par les électrons et le modèle à deux températures [81, 82] est ensuite résolu. Dans celui-ci, le terme de couplage électron-phonon  $\gamma_{ei}$  est exprimé en utilisant le modèle développé par Kaganov *et al.* [83] et s'écrit  $\gamma_{ei} = \gamma_0 n_e^{2/3}$ , avec  $\gamma_0$  une

constante fixée de manière à retrouver les valeurs de  $\gamma_{ei}$  à basse température.

Pour l'or, la densité d'états  $g(\varepsilon)$  est approximée par la somme de la densité d'états de la bande  $s$  évoluant en  $\sqrt{\varepsilon}$  avec la densité d'états de la bande  $d$ , modélisée par une fonction créneau centrée sur 4.5 eV sous le niveau de Fermi avec une largeur de 5.3 eV. Cette description contribue à augmenter la densité des électrons excités quand la température électronique devient supérieure à 3000 K. En découle ensuite une description dynamique de la capacité calorifique

$$C_{ve} = \int_0^\infty g(\varepsilon) \frac{\partial f(\varepsilon)}{\partial T_e} \varepsilon d\varepsilon, \quad (\text{A.2})$$

et de la pression électronique  $P_e$  écrite selon [84] :

$$P_e V = \frac{2}{3} E_e \text{ avec } E_e = \int_0^\infty g(\varepsilon) f(\varepsilon) \varepsilon d\varepsilon. \quad (\text{A.3})$$

## Bibliographie

- [1] Richard W. Lee, Stephen J. Moon, Hyun-Kyung Chung, Wojciech Rozmus, Hector A. Baldis, Gianluca Gregori, Robert C. Cauble, Otto L. Landen, Justin S. Wark, Andrew Ng, Steven J. Rose, Ciaran L. Lewis, Dave Riley, Jean-Claude Gauthier, and Patrick Audebert. Finite temperature dense matter studies on next-generation light sources. *Journal of the Optical Society of America B*, 20(4) :770–778, April 2003.
- [2] Tristan Guillot. Interiors of giant planets inside and outside the solar system. *Science*, 286(5437) :72–77, January 1999.
- [3] S. T. Weir, A. C. Mitchell, and W. J. Nellis. Metallization of fluid molecular hydrogen at 140 GPa (1.4 mbar). *Physical Review Letters*, 76(11) :1860–1863, March 1996.
- [4] A. Miotello and R. Kelly. Laser-induced phase explosion : new physical problems when a condensed phase approaches the thermodynamic critical temperature. *Applied Physics A : Materials Science & Processing*, 69(7) :S67–S73, 1999.
- [5] Roger Kelly and Antonio Miotello. Comments on explosive mechanisms of laser sputtering. *Applied Surface Science*, 96–98(0) :205–215, April 1996.
- [6] D. E. Grady. Local inertial effects in dynamic fragmentation. *Journal of Applied Physics*, 53(1) :322–325, January 1982.
- [7] E.G. Gamaly, A.V. Rode, V.T. Tikhonchuk, and B. Luther-Davies. Electrostatic mechanism of ablation by femtosecond lasers. *Applied Surface Science*, 197–198(0) :699–704, September 2002.
- [8] E. G Gamaly, A. V Rode, B. Luther-Davies, and V. T Tikhonchuk. Ablation of solids by femtosecond lasers : Ablation mechanism and ablation thresholds for metals and dielectrics. *Physics of Plasmas*, 9(3) :949–957, March 2002.
- [9] Vanina Recoules, Patrick Renaudin, Jean Cl  rouin, Pierre Noiret, and Gilles Z  rah. Electrical conductivity of hot expanded aluminum : Experimental measurements and ab initio calculations. *Physical Review E*, 66(5) :056412, November 2002.

- [10] P. Renaudin, C. Blancard, J. Cl erouin, G. Faussurier, P. Noiret, and V. Recoules. Aluminum equation-of-state data in the warm dense matter regime. *Physical Review Letters*, 91(7) :075002, 2003.
- [11] T. H. Maiman. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 187(4736) :493–494, August 1960.
- [12] Donna Strickland and Gerard Mourou. Compression of amplified chirped optical pulses. *Optics Communications*, 55(6) :447–449, October 1985.
- [13] C.E. Cook. Pulse compression-key to more efficient radar transmission. *Proceedings of the IRE*, 48(3) :310 –316, March 1960.
- [14] B. Barbrel, M. Koenig, A. Benuzzi-Mounaix, E. Brambrink, C. R. D. Brown, D. O. Gericke, B. Nagler, M. Rabec le Gloahec, D. Riley, C. Spindloe, S. M. Vinko, J. Vorberger, J. Wark, K. W unsch, and G. Gregori. Measurement of short-range correlations in shock-compressed plastic by short-pulse x-ray scattering. *Physical Review Letters*, 102(16) :165004, April 2009.
- [15] L. B. Da Silva, P. Celliers, G. W. Collins, K. S. Budil, N. C. Holmes, T. W. Barbee Jr., B. A. Hammel, J. D. Kilkenny, R. J. Wallace, M. Ross, R. Cauble, A. Ng, and G. Chiu. Absolute equation of state measurements on shocked liquid deuterium up to 200 GPa. *Physical Review Letters*, 78(3) :483–486, January 1997.
- [16] E. L. Clark, K. Krushelnick, J. R. Davies, M. Zepf, M. Tatarakis, F. N. Beg, A. Machacek, P. A. Norreys, M. I. K. Santala, I. Watts, and A. E. Dangor. Measurements of energetic proton transport through magnetized plasma from intense laser interactions with solids. *Physical Review Letters*, 84(4) :670–673, January 2000.
- [17] R. A. Snavely, M. H. Key, S. P. Hatchett, T. E. Cowan, M. Roth, T. W. Phillips, M. A. Stoyer, E. A. Henry, T. C. Sangster, M. S. Singh, S. C. Wilks, A. MacKinnon, A. Offenberger, D. M. Pennington, K. Yasuike, A. B. Langdon, B. F. Lasinski, J. Johnson, M. D. Perry, and E. M. Campbell. Intense high-energy proton beams from petawatt-laser irradiation of solids. *Physical Review Letters*, 85(14) :2945–2948, October 2000.
- [18] S. C. Wilks, A. B. Langdon, T. E. Cowan, M. Roth, M. Singh, S. Hatchett, M. H. Key, D. Pennington, A. MacKinnon, and R. A. Snavely. Energetic proton generation in ultra-intense laser–solid interactions. *Physics of Plasmas*, 8(2) :542–549, February 2001.
- [19] P. K. Patel, A. J. Mackinnon, M. H. Key, T. E. Cowan, M. E. Ford, M. Allen, D. F. Price, H. Ruhl, P. T. Springer, and R. Stephens. Isochoric heating of solid-density matter with an ultrafast proton beam. *Physical Review Letters*, 91(12) :125004, 2003.
- [20] A. Mancic, J. Robiche, P. Antici, P. Audebert, C. Blancard, P. Combis, F. Dorchie, G. Faussurier, S. Fourmaux, M. Harmand, R. Kodama, L. Lancia, S. Mazevet, M. Nakatsutsumi, O. Peyrusse, V. Recoules, P. Renaudin, R. Shepherd, and J. Fuchs. Isochoric

- heating of solids by laser-accelerated protons : Experimental characterization and self-consistent hydrodynamic modeling. *High Energy Density Physics*, 6(1) :21–28, January 2010.
- [21] J. P. Geindre, P. Audebert, A. Rousse, F. Fallières, J. C. Gauthier, A. Mysyrowicz, A. Dos Santos, G. Hamoniaux, and A. Antonetti. Frequency-domain interferometer for measuring the phase and amplitude of a femtosecond pulse probing a laser-produced plasma. *Optics Letters*, 19(23) :1997–1999, December 1994.
- [22] K. Widmann, T. Ao, M. E. Foord, D. F. Price, A. D. Ellis, P. T. Springer, and A. Ng. Single-state measurement of electrical conductivity of warm dense gold. *Physical Review Letters*, 92(12) :125002, March 2004.
- [23] Y. Ping, D. Hanson, I. Koslow, T. Ogitsu, D. Prendergast, E. Schwegler, G. Collins, and A. Ng. Broadband dielectric function of nonequilibrium warm dense gold. *Physical Review Letters*, 96(25) :255003, June 2006.
- [24] 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. *Physical Review Letters*, 96(5) :055001, February 2006.
- [25] P. Blanc, P. Audebert, F. Fallières, J. P. Geindre, J. C. Gauthier, A. Dos Santos, A. Mysyrowicz, and A. Antonetti. Phase dynamics of reflected probe pulses from sub-100-fs laser-produced plasmas. *Journal of the Optical Society of America B*, 13(1) :118–124, January 1996.
- [26] C. Quiox, G. Hamoniaux, A. Antonetti, J.-C. Gauthier, J.-P. Geindre, and P. Audebert. Ultrafast plasma studies by phase and amplitude measurements with femtosecond spectral interferometry. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 65(1–3) :455–462, April 2000.
- [27] Neil W. Ashcroft and N. David Mermin. *Physique des solides*. L’Editeur : EDP Sciences, 2002.
- [28] William L. Kruer. *The Physics of Laser Plasma Interactions*. Westview Press, 2003.
- [29] Zhibin Lin, Leonid V. Zhigilei, and Vittorio Celli. Electron-phonon coupling and electron heat capacity of metals under conditions of strong electron-phonon nonequilibrium. *Physical Review B*, 77(7) :075133, February 2008.
- [30] Glenn A. Burdick. Energy band structure of copper. *Physical Review*, 129(1) :138–150, January 1963.
- [31] V. Recoules, J. Clérrouin, G. Zérah, P. M. Anglade, and S. Mazevet. Effect of intense laser irradiation on the lattice stability of semiconductors and metals. *Physical Review Letters*, 96(5) :055503, February 2006.
- [32] Mark Fox. *Optical Properties of Solids*. Oxford University Press, March 2010.

- [33] Martin Dressel and George Grüner. *Electrodynamics of Solids : Optical Properties of Electrons in Matter*. Cambridge University Press, January 2002.
- [34] H. Ehrenreich and H. R. Philipp. Optical properties of ag and cu. *Physical Review*, 128(4) :1622–1629, November 1962.
- [35] K. Stahrenberg, Th. Herrmann, K. Wilmers, N. Esser, W. Richter, and M. J. G. Lee. Optical properties of copper and silver in the energy range 2.5–9.0 eV. *Physical Review B*, 64(11) :115111, August 2001.
- [36] Aleksandar D. Rakic, Aleksandra B. Djurisic, Jovan M. Elazar, and Marian L. Majewski. Optical properties of metallic films for vertical-cavity optoelectronic devices. *Applied Optics*, 37(22) :5271–5283, August 1998.
- [37] Aleksandra B Djurišić, Jovan M Elazar, and Aleksandar D Rakić. Modeling the optical constants of solids using genetic algorithms with parameter space size adjustment. *Optics Communications*, 134(1–6) :407–414, January 1997.
- [38] P. G. Etchegoin, E. C. Le Ru, and M. Meyer. An analytic model for the optical properties of gold. *The Journal of Chemical Physics*, 125(16) :164705–164705–3, October 2006.
- [39] Lyman Spitzer and Richard Härm. Transport phenomena in a completely ionized gas. *Physical Review*, 89(5) :977–981, March 1953.
- [40] Stefano Atzeni and Jürgen Meyer-Ter-Vehn. *The Physics of Inertial Fusion : Beam Plasma Interaction, Hydrodynamics, Hot Dense Matter*. Oxford University Press, August 2004.
- [41] R. Ramis, K. Eidmann, J. Meyer-ter Vehn, and S. Hüller. MULTI-fs – a computer code for laser–plasma interaction in the femtosecond regime. *Computer Physics Communications*, 183(3) :637–655, March 2012.
- [42] Lyman Spitzer. *Physics of fully ionized gases*. Interscience Publishers, 1962.
- [43] K. Eidmann, J. Meyer-ter Vehn, T. Schlegel, and S. Hüller. Hydrodynamic simulation of subpicosecond laser interaction with solid-density matter. *Physical Review E*, 62(1) :1202–1214, July 2000.
- [44] B. Chimier, V. T. Tikhonchuk, and L. Hallo. Heating model for metals irradiated by a subpicosecond laser pulse. *Physical Review B*, 75(19) :195124, May 2007.
- [45] D. G. Yakovlev and V. A. Urpin. Thermal and electrical conductivity in white dwarfs and neutron stars. *Astronomicheskii Zhurnal*, 57 :526–536, June 1980.
- [46] N.A. Inogamov, V.V. Zhakhovskii, S.I. Ashitkov, V.A. Khokhlov, Yu.V. Petrov, P.S. Komarov, M.B. Agranat, S.I. Anisimov, and K. Nishihara. Two-temperature relaxation and melting after absorption of femtosecond laser pulse. *Applied Surface Science*, 255(24) :9712–9716, September 2009.

- 
- [47] Jean-Philippe Colombier. *Théorie et simulation de l'interaction des impulsions laser ultracourtes à flux modéré avec un solide métallique*. PhD thesis, 2005.
- [48] E.S. Weibel. Anomalous skin effect in a plasma. *Phys. Fluids.*, 10 :741–748, 1967.
- [49] Paul Gibbon. *Short Pulse Laser Interactions With Matter : An Introduction*. Imperial College Press, 2005.
- [50] F. Brunel. Not-so-resonant, resonant absorption. *Physical Review Letters*, 59(1) :52–55, July 1987.
- [51] W. L. Kruer and Kent Estabrook. J×B heating by very intense laser light. *Physics of Fluids*, 28(1) :430–432, January 1985.
- [52] N. Del Fatti, C. Voisin, M. Achermann, S. Tzortzakis, D. Christofilos, and F. Vallée. Nonequilibrium electron dynamics in noble metals. *Physical Review B*, 61(24) :16956–16966, June 2000.
- [53] C.-K. Sun, F. Vallée, L. H. Acioli, E. P. Ippen, and J. G. Fujimoto. Femtosecond-tunable measurement of electron thermalization in gold. *Physical Review B*, 50(20) :15337–15348, November 1994.
- [54] D. Fisher, M. Fraenkel, Z. Henis, E. Moshe, and S. Eliezer. Interband and intraband (drude) contributions to femtosecond laser absorption in aluminum. *Physical Review E*, 65(1) :016409, December 2001.
- [55] Florence Fallies. *Etude numérique et expérimentale de l'interaction d'une impulsion laser subpicoseconde avec une cible solide*. PhD thesis, 1994.
- [56] Caroline QuoiX. *Etude des propriétés optiques et de l'hydrodynamique de plasmas produit par impulsion laser subpicoseconde sur cible solide*. PhD thesis, 1998.
- [57] Sandrine Rebibo. *Interférométrie à haute résolution temporelle d'un plasma créé par l'interaction d'une impulsion ultra brève et intense avec une cible solide*. PhD thesis, 2000.
- [58] Fabien Quéré. *Etude des mécanismes d'excitation électronique associés au claquage des diélectriques induit par un champ laser intense*. PhD thesis, 2000.
- [59] J. P. Colombier, P. Combis, F. Bonneau, R. Le Harzic, and E. Audouard. Hydrodynamic simulations of metal ablation by femtosecond laser irradiation. *Physical Review B*, 71(16) :165406, April 2005.
- [60] Paul Ponsonnet and André Moussa. *Cours de physique : Par André Moussa,...* Paul Ponsonnet. A. Desvigne, 1963.
- [61] CVI laser optics and melles griot home page. <http://www.cvimellesgriot.com/>, 2013.
- [62] Georges Bruat. *Optique - Les cours de référence - Sixième édition révisée par Alfred Kastler*. Dunod, 2005.

- [63] Y. Ping, A.A. Correa, T. Ogitsu, E. Draeger, E. Schwegler, T. Ao, K. Widmann, D.F. Price, E. Lee, H. Tam, P.T. Springer, D. Hanson, I. Koslow, D. Prendergast, G. Collins, and A. Ng. Warm dense matter created by isochoric laser heating. *High Energy Density Physics*, 6(2) :246–257, June 2010.
- [64] Paul A. Anderson. Work function of gold. *Physical Review*, 115(3) :553–554, August 1959.
- [65] George E. Totten and D. Scott MacKenzie. *Handbook of Aluminum : Vol. 1 : Physical Metallurgy and Processes*. CRC Press, March 2003.
- [66] Harland G. Tompkins and Eugene A. Irene. *Handbook Of Ellipsometry*. William Andrew, 2005.
- [67] Edward D. Palik. *Handbook of Optical Constants of Solids : Index*. Academic Press, 1998.
- [68] Samuel S. So. Ellipsometric analyses for an absorbing surface film on an absorbing substrate with or without an intermediate surface layer. *Surface Science*, 56(0) :97–108, June 1976.
- [69] F Quéré, S Guizard, and Ph Martin. Time-resolved study of laser-induced breakdown in dielectrics. *Europhysics Letters (EPL)*, 56(1) :138–144, October 2001.
- [70] M. Kandyla, T. Shih, and E. Mazur. Femtosecond dynamics of the laser-induced solid-to-liquid phase transition in aluminum. *Physical Review B*, 75(21) :214107, June 2007.
- [71] N. W. Ashcroft and K. Sturm. Interband absorption and the optical properties of polyvalent metals. *Physical Review B*, 3(6) :1898–1910, March 1971.
- [72] Leif A. A. Pettersson, Lucimara S. Roman, and Olle Inganäs. Modeling photocurrent action spectra of photovoltaic devices based on organic thin films. *Journal of Applied Physics*, 86(1) :487–496, July 1999.
- [73] Benoit Chimier. *Modélisation des processus physiques hors équilibres de l'interaction d'une impulsion laser sub-picoseconde avec une cible métallique*. PhD thesis, 2008.
- [74] L. D. Landau, E. M. Lifchitz, A. Kossévitch, and L. Pitayevski. *Physique théorique : Théorie de l'élasticité*. Mir, 1990.
- [75] Hidetoshi Morikami, Hitoki Yoneda, Ken-ichi Ueda, and Richard M. More. Detection of hydrodynamic expansion in ultrashort pulse laser ellipsometric pump-probe experiments. *Physical Review E*, 70(3) :035401, September 2004.
- [76] Jeppe Byskov-Nielsen, Juha-Matti Savolainen, Martin Christensen, and Peter Balling. Ultra-short pulse laser ablation of copper, silver and tungsten : experimental data and two-temperature model simulations. *Applied Physics A : Materials Science & Processing*, 103(2) :447–453, 2011.

- [77] J. Hohlfeld, S.-S. Wellershoff, J. Güdde, U. Conrad, V. Jähnke, and E. Matthias. Electron and lattice dynamics following optical excitation of metals. *Chemical Physics*, 251(1-3) :237–258, January 2000.
- [78] Wai-Lun Chan, Robert S. Averback, David G. Cahill, and Alexei Lagoutchev. Dynamics of femtosecond laser-induced melting of silver. *Physical Review B*, 78(21) :214107, December 2008.
- [79] Andreas Hirsch. The era of carbon allotropes. *Nature Materials*, 9(11) :868–871, 2010.
- [80] K. Sokolowski-Tinten, J. Solis, J. Bialkowski, J. Siegel, C. N. Afonso, and D. von der Linde. Dynamics of ultrafast phase changes in amorphous GeSb films. *Physical Review Letters*, 81(17) :3679–3682, October 1998.
- [81] S.I. Anisimov, B.L. Kapeliovich, and T.L. Perel'man. Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses. *Sov. Phys. JETP*, 39 :375, 1974.
- [82] R. W. Schoenlein, W. Z. Lin, J. G. Fujimoto, and G. L. Eesley. Femtosecond studies of nonequilibrium electronic processes in metals. *Physical Review Letters*, 58(16) :1680–1683, April 1987.
- [83] B. Chimier. Solid-liquid phase transition induced by fast heating of a thin metal film. *EPL (Europhysics Letters)*, 92(1) :15001, October 2010.
- [84] L. D. Landau and E. M. Lifshitz. *Statistical Physics*. 1980.