



HAL
open science

Effets thermiques dus à l'interaction laser-matière dans les métaux en régime femtoseconde

Stéphane Valette

► **To cite this version:**

Stéphane Valette. Effets thermiques dus à l'interaction laser-matière dans les métaux en régime femtoseconde. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Jean Monnet - Saint-Etienne, 2003. Français. NNT: . tel-00004642

HAL Id: tel-00004642

<https://theses.hal.science/tel-00004642>

Submitted on 12 Feb 2004

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.

Ecole Nationale Supérieure
des Mines de Saint-Etienne

Université Jean Monnet
de Saint-Etienne

N° d'ordre : 322

THÈSE

Présentée pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR

Spécialité : Science et Génie des Matériaux

PAR

Stéphane Valette

EFFETS THERMIQUES DUS A L'INTERACTION LASER-MATIÈRE DANS LES MÉTAUX EN RÉGIME FEMTOSECONDE

Soutenue le 8 décembre 2003 devant la commission d'examen

M. P. GAROCHE	Rapporteur
M. M. RAYNAUD	Rapporteur
M. E. AUDOUARD	Examineur - Directeur de thèse
M. C. DONNET	Examineur
M. R. FORTUNIER	Examineur - Directeur de thèse
M. W. KAUTEK	Examineur - Président du jury

Remerciements

Je tiens à remercier les responsables des laboratoires qui m'ont accueilli pour ce travail de thèse. Je remercie ainsi Régis Blondeau, responsable du centre Sciences des Matériaux et des Structures de l'Ecole des Mines de Saint-Etienne. Je remercie également Pierre Laporte, directeur du Laboratoire de Traitement du Signal et Instrumentation de l'Université Jean Monnet.

J'adresse mes remerciements à mes directeurs de thèse. Merci à Roland Fortunier pour avoir encadré mes travaux et pour ses corrections d'articles très précieuses.

Je remercie Eric Audouard pour avoir également encadré ces trois années de recherche. Je lui suis particulièrement reconnaissant pour la confiance qu'il m'a accordée dans tout ce travail et pour les heures d'enseignement qu'il a bien voulu me confier. Je garde en mémoire les discussions-débats de deux auvergnats difficiles à convaincre...

Je suis très reconnaissant envers Ronan Le Harzic, grand spécialiste des lasers femtosecondes, sans qui aucune expérience de micro-usinage aurait été possible. Je le remercie pour sa joie, sa bonne humeur, dans nos rédactions d'articles.

J'en profite pour remercier de façon globale l'équipe "Laser femtoseconde et applications" du LTSL.

Pour ce qui concerne l'Ecole des Mines, je tiens à remercier toutes les personnes qui ont contribué à mon travail. Je remercie ainsi Paul Jouffrey pour son partage de connaissance en microscopie électronique. Un grand merci à Christophe Desrayaud et à Séverine Girard pour les expériences de déformation. Je remercie aussi Olivier Breuil et Robert Peycelon, les pros de

l'informatique, pour leur assistance sans faille.

Un merci tout particulier à Maryline Mondon, spécialiste des monocristaux, pour tout ce qu'elle a fait dans ce travail.

Je remercie tous les membres de l'ex département BMTS, avec lesquels on retrouvait l'ambiance "bistrot" et les discussions qui partent tous azimuts.

Une pensée très forte va vers André qui manque cruellement.

J'adresse aussi un grand merci à l'ensemble de l'équipe des thésards de l'école ; équipe qui fait vivre une bonne partie de cette école. Merci à Philippe Heurtier pour son amitié et sa formation en EBSD!!!!

Enfin, je souhaite remercier très sincèrement ma plus grande rencontre à l'Ecole des Mines en la personne de Jean-Pierre Lowys. Je le remercie pour sa générosité, son amour de la physique, sa passion que l'on a pu partager pendant les enseignements de mécanique quantique qu'il a bien voulu me confier.

Je remercie Christophe Donnet qui a accepté de faire partie de mon jury de soutenance et qui a bien voulu prendre le temps de lire mon manuscrit et me transmettre ses remarques.

Je remercie Pierre Garoche qui m'a fait l'honneur d'être rapporteur de ce travail de thèse. Ses remarques sont toujours une mine d'informations.

Un très grand merci à Martin Raynaud qui également accepté de faire un rapport sur mon manuscrit et qui m'a fait l'honneur de montrer un grand enthousiasme envers mon travail.

J'adresse également mes remerciements à Wolfgang Kautek qui m'a fait l'honneur d'être le président de mon jury de thèse, ce dont je suis très fier.

De façon plus profonde, je tiens à remercier mes parents qui m'ont toujours suivi dans mes choix et qui ont tout fait pour que je réussisse ce travail. Je les remercie pour l'ensemble de ce qu'ils ont fait pour moi. Je remercie bien sûr mes frères et sœur pour leur soutien sans faille.

Un très grand merci à Renée et Charly qui sont pour beaucoup dans tout ça.

Enfin, je tiens à remercier celle qui a suivi ce cursus du début à la fin avec une confiance incroyable et dont l'amour a permis la réussite : Anne-Catherine.
Merci.

Table des matières

Introduction générale	5
1 Le Modèle à Deux Températures	13
1.1 Origine du modèle	16
1.1.1 Processus d'absorption	16
1.1.2 Processus de relaxation	20
1.1.3 Analyse dynamique	24
1.2 Mise en place	34
1.2.1 Chaleur spécifique	35
1.2.2 Conductivité thermique	40
1.2.3 Constante de couplage électron-phonon	43
1.3 Hypothèses d'utilisation	45
1.3.1 Le terme source	46
1.3.2 Le système à résoudre	55
1.3.3 Trois types de métaux	56
1.4 Conclusion	59
2 Traitement numérique - Résultats	61
2.1 Traitement numérique	63

2.1.1	Géométrie et symétrie de la cible	63
2.1.2	Méthode utilisée	65
2.1.3	Modélisation à deux dimensions par éléments finis	67
2.1.4	Conditions initiales et conditions aux limites	68
2.2	Résultats numériques	72
2.2.1	Etude temporelle de l'évolution des températures . . .	72
2.2.2	Evolution des températures dans la direction du faisceau	83
2.2.3	Distribution radiale des températures : modélisation de la <i>ZAT</i>	89
2.2.4	<i>ZAT</i> radiale d'une lame mince d'aluminium de 500 <i>nm</i> d'épaisseur.	100
2.2.5	Fluence seuil en fonction de l'épaisseur pour une cible d'aluminium en régime femtoseconde	107
2.2.6	Effet du nombre d'impulsions	110
2.2.7	Effet de la température maximale	112
2.3	Conclusion	114
3	Analyse expérimentale de la Zone Affectée Thermiquement	117
3.1	Description de la chaîne laser femtoseconde	122
3.1.1	Etat de l'art des sources laser femtosecondes	122
3.1.2	Principe de la génération d'impulsions femtosecondes .	124
3.1.3	Dispositif expérimental	128
3.2	Etude expérimentale de la <i>ZAT</i> par microscopie électronique à transmission	131
3.2.1	Problématique	131

3.2.2	Préparation des échantillons	132
3.2.3	Dispositif expérimental et micro-usinage	134
3.2.4	Résultats et analyses	138
3.2.5	Discussion	144
3.3	Etude expérimentale de la ZAT par microscopie électronique à balayage	146
3.3.1	Problématique	146
3.3.2	Préparation des échantillons	147
3.3.3	Micro-usinage	153
3.3.4	Préparation de la surface à analyser	155
3.3.5	Résultats et analyses	156
3.3.6	Conclusion	169
	Conclusion générale	171
	A Exemple de mise en données pour un calcul sous Freefem+	177
	B Principe de fonctionnement d'un laser déclenché	187
	C Etude succincte des effets thermiques d'un laser YAG sur un monocristal d'aluminium	193
	Bibliographie	197

Introduction générale

C'est à la suite des travaux de A.L. Schawlow et C.H. Townes¹ que T.H. Maiman réalise le premier laser ² à rubis en 1960 [SCH 58] [MAI 60a] [MAI 60b]. Les lasers vont intégrer les laboratoires de recherche aussi bien en tant qu'objet de recherche à part entière que comme outil d'investigations. Tous les domaines de la recherche scientifique sont concernés. Cependant, à l'opposé de ce développement rapide dans les laboratoires, le laser peine à pénétrer le monde industriel, où le remplacement de l'outil classique peine à s'imposer. Les intérêts du travail de la matière par faisceau laser ne sont pas toujours justifiés dans tous les domaines d'application éventuels. Cette situation évolue avec l'intégration toujours plus grande des systèmes lasers et leur miniaturisation. Le milieu médical est un exemple concret de l'intégration sans cesse croissante du laser. Que ce soit au niveau des interventions de chirurgie en ophtalmologie, en neurologie, ou pour le marquage des implants et autres instruments de chirurgie, la médecine d'un point de vue général utilise le laser sous divers aspects. Plus récemment, la course à la miniaturisation imposée initialement par l'électronique, s'impose dans le milieu de la mécanique, faisant apparaître des disciplines à part entière à l'échelle micrométrique voire nanométrique. Le micro-usinage des métaux à ces échelles est devenu un domaine privilégié de l'utilisation du rayonnement laser. A cet égard, ce sujet a été développé dans le but de comprendre les effets thermiques mis en jeu à la suite d'une interaction laser-métal.

¹Chronologiquement : postulat de l'émission stimulée par Einstein en 1917 ; pompage optique par Kastler en 1950 et élaboration de la première théorie laser par Townes et Schawlow en 1958.

²LASER : Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation.

Ainsi, la problématique de cette thèse se situe typiquement à l'interface entre la recherche fondamentale et appliquée. De ce fait, ce travail s'articule autour de l'aspect fondamental de l'interaction laser-matière avec comme point de mire le développement d'un outil ultra-performant pour l'industrie du micro-usinage des métaux.

Traiter l'interaction laser-matière au sens général serait un sujet trop large, aussi nous nous sommes fixé un cadre précis à nos investigations : *les conséquences d'un point de vue thermique de l'interaction d'impulsions lasers ultra-brèves avec des cibles métalliques*. Notre but est donc l'étude des effets thermiques dus à l'interaction de sources lasers sub-picosecondes avec des cibles métalliques. Dans ces conditions, nous ne nous intéresserons pas directement à la physique des mécanismes d'ablation mais nous nous intéresserons aux problèmes de physique des matériaux associés, à savoir aux caractéristiques microstructurales de la matière dans la zone affectée par le traitement laser. Cette étude se déploie selon deux axes principaux :

- Le premier axe concerne le mode de fonctionnement de notre source laser. D'un point de vue général, le fonctionnement d'un laser peut s'effectuer selon deux processus : soit en mode continu, où le faisceau est émis de façon continue au cours du temps, soit en mode impulsionnel pour lequel le faisceau laser est constitué d'impulsions régulièrement espacées dans le temps. Notre étude concerne le régime impulsionnel où l'on compare l'interaction d'impulsions nanosecondes et femtosecondes avec des cibles métalliques. L'intérêt de cette réduction temporelle des impulsions réside dans le fait qu'à énergie moyenne constante, il est possible d'atteindre des puissances instantanées ³ très im-

³Par puissance instantanée, on entend la puissance associée à une impulsion. On parle aussi de puissance crête.

portantes pouvant être de l'ordre du petawatt [Sal00] [Sal01]. Pour générer de telles impulsions, nous employons une chaîne laser utilisant la technologie $Ti : Sa$ ⁴, délivrant des impulsions allant de quelques centaines de femtosecondes à plusieurs nanosecondes avec une longueur d'onde centrée autour de $800nm$.

- Le second axe de notre étude concerne le matériau mis en jeu dans l'interaction. Etant intéressés par les applications en micro-mécanique, nous avons orienté nos recherches sur les métaux. De plus, ces derniers sont bien décrits sur le plan théorique. Phénoménologiquement, la comparaison des résultats obtenus lors de micro-usinages d'échantillons métalliques à l'aide d'impulsions nanosecondes et femtosecondes est sans équivoque : la qualité des découpes en régime sub-picoseconde est largement supérieure à celle obtenue avec des impulsions plus longues (Figure 1). Pour expliquer cela, on décrit souvent le micro-usinage femtoseconde des métaux comme un processus athermique.

Le but de ce travail de thèse a été de montrer que la nature "athermique" de l'interaction laser-métal dans le cas d'impulsions femtosecondes doit être utilisée avec précautions et que sur une échelle d'espace très réduite, une diffusion de chaleur a lieu même pour le régime sub-picoseconde. Pour cela, nous avons utilisé une approche macroscopique de l'interaction, point de vue permettant de traiter cette interaction de façon purement thermique, et avons démontré que des effets thermiques extrêmement localisés dans l'espace apparaissent même en régime ultra-bref. Notre intérêt pour le contrôle de la

⁴Milieu de gain solide utilisant un cristal de Saphir dopé au titane.

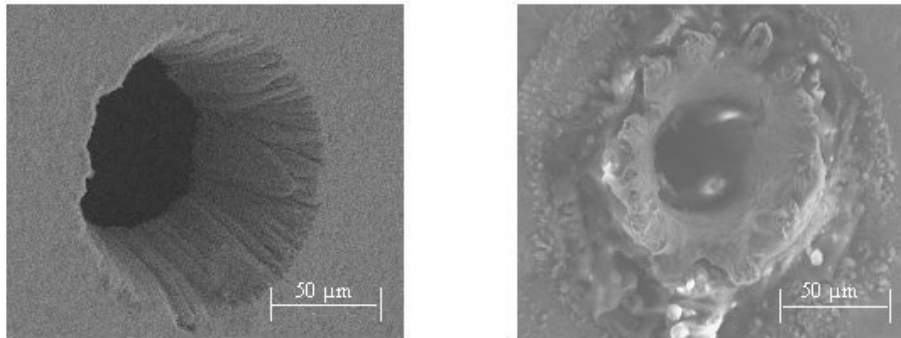


FIG. 1 – Exemples typiques de micro-usinage laser sur des échantillons de cuivre de $100\mu\text{m}$ d'épaisseur. A gauche, usinage femtoseconde avec des impulsions de 180fs ; à droite usinage nanoseconde avec des impulsions de 8ns . Dans les deux cas, la densité d'énergie par unité de surface est de $8\text{J}/\text{cm}^2$.

qualité des applications de micro-usinage a orienté notre travail sur l'aspect radial des effets thermiques affectant le matériau.

Pour faire la démonstration de l'existence d'effets thermiques et permettre leur quantification, deux étapes principales ont été franchies.

Nous avons tout d'abord développé une approche numérique basée sur la mise en oeuvre d'un modèle thermique connu sous le nom de *Modèle à Deux Températures* [ANI 74]. Cette approche permet de mettre en évidence la différence des processus physiques mis en jeu lorsque l'on traite l'interaction laser-métal dans le cas d'impulsions nanosecondes ou femtosecondes. De plus, et dans le but de prendre en compte les effets thermiques dans la direction radiale du faisceau, nous avons développé un traitement numérique à deux dimensions de ce modèle. Enfin, toujours dans le cadre de la modélisation, nous avons comparé les différentes réponses du matériau à l'excitation optique pour trois types de métaux : un métal simple, un métal de transition

et un métal noble. Chacun de ces métaux a des propriétés électroniques différentes, ce qui entraîne une réponse à l'excitation laser différente.

La deuxième étape a consisté à mettre en place des dispositifs expérimentaux visant à quantifier la Zone Affectée Thermiquement (*ZAT*) dans la direction radiale pour les deux régimes d'impulsion. La définition de la *ZAT* repose sur des arguments de physique des matériaux et sa quantification a fait appel aux techniques de microscopie électronique en transmission et à balayage. Pour ces deux types de caractérisation, nous avons mis au point deux montages expérimentaux permettant de comparer les effets thermiques radiaux pour les régimes d'impulsion nanoseconde et femtoseconde.

Dans cette logique, la première partie du manuscrit est consacrée au contexte théorique de l'étude décrivant les mécanismes d'absorption et de relaxation de l'énergie dans les métaux ainsi qu'à l'approche macroscopique du Modèle à Deux Températures qui en découle.

Nous donnons ensuite, dans une deuxième partie, les caractéristiques de notre modélisation numérique et le développement à deux dimensions que nous avons fait du Modèle à Deux Températures. Nous présentons et discutons alors les différents résultats numériques obtenus par ce modèle.

Un troisième chapitre est consacré à l'aspect expérimental de ce travail. Il présente en premier lieu notre chaîne laser femtoseconde. Nous développons ensuite les hypothèses de travail - basées sur une approche microstructurale de nos échantillons - que nous avons formulées pour analyser la Zone Affectée Thermiquement. Les techniques d'analyse expérimentale, basées sur les microscopies électroniques en transmission et à balayage, sont elles aussi

détaillées dans cette partie.

Enfin notre conclusion générale porte sur les avancées de ce travail et les diverses voies ouvertes à la suite de cette recherche.

Il est important de noter que ce sujet de recherche associe la culture scientifique de spécialistes du laser avec celle des physiciens des matériaux. Le langage interdisciplinaire qui en découle demande des efforts particuliers. Des notions courantes pour une communauté doivent parfois être rappelées à l'autre communauté. De plus, en vertu de cette interdisciplinarité, les rappels bibliographiques sont introduits lors de la présentation des différents concepts utilisés et ne constituent pas un chapitre à part entière.

Chapitre 1

Le Modèle à Deux

Températures

L'interaction laser-matière met en jeu de nombreux mécanismes physiques. En effet, la description d'une telle interaction nécessite la prise en compte d'une part des caractéristiques du laser (énergie, longueur d'onde, ...) et d'autre part de celles de la matière formant la cible. Avoir la prétention de répondre à l'ensemble des questions soulevées par cette discipline à part entière de la physique serait illusoire. Ainsi, le cadre explicite de ce travail est centré sur l'étude des interactions d'impulsions lasers de durée ultra-brève - *typiquement quelques centaines de femtosecondes* - avec des **cibles métalliques**. Une confrontation des résultats avec des impulsions plus longues (nanosecondes) est effectuée. Le but principal de cette modélisation est de fournir une estimation de l'étendue de la Zone Affectée Thermiquement (ZAT). Cette recherche porte ainsi sur l'étude des effets thermiques induits en périphérie de la zone irradiée. La largeur de cette zone est directement responsable de la qualité du micro-usinage. En effet, lors d'une irradiation laser, une partie de l'énergie déposée dans le matériau sert à l'ablation de matière. La partie résiduelle de l'impulsion qui ne sert pas directement à l'ablation demeure dans la matière et entraîne son échauffement sur une largeur définissant la ZAT.

Le domaine des impulsions sub-picosecondes et la nature métallique des cibles irradiées nécessitent un traitement spécifique de ce type d'interaction. L'originalité de l'approche se trouve dans la formulation macroscopique de l'interaction laser-métal. Celle-ci est en effet décrite d'un point de vue purement thermique par la mise en oeuvre d'un modèle connu sous le nom de Modèle à Deux Températures et basé sur la notion de gaz d'électrons.

Ce premier chapitre a pour but de présenter et de décrire le Modèle à Deux Températures (MDT). Pour cela, nous rappelons en premier lieu les phénomènes d'absorption et de relaxation de l'énergie dans les métaux. La dynamique de ces processus - c'est-à-dire l'étude des temps caractéristiques d'absorption et de relaxation - est le fondement du modèle. Un deuxième paragraphe est consacré à la formulation générale du modèle. Enfin, nous appliquons le MDT sur une géométrie à deux dimensions permettant la mesure des effets thermiques dans la direction radiale du faisceau. L'ensemble des hypothèses et des approximations formulées est présenté et discuté.

1.1 Origine du modèle

1.1.1 Processus d'absorption

La remarque principale à formuler pour commencer cette analyse concerne les rayonnements auxquels sont soumises les cibles métalliques de notre étude. En effet, la longueur d'onde de la lumière émise par le dispositif laser utilisé est centrée autour de $800nm$ ce qui correspond à la limite du spectre visible et à une énergie de photon d'environ $1.55eV$ ¹. Dans ces conditions, le mécanisme d'absorption de l'énergie est principalement dû aux électrons [PET 00] [PET 97]. Nous allons donc traiter la manière dont l'énergie électromagnétique peut être absorbée par les électrons d'un métal. L'approche thermique de l'interaction suppose un traitement global du métal vu comme solide cristallin formé d'un réseau d'ions quasi-fixes entouré d'un gaz d'électrons.

¹Typiquement, cette longueur d'onde correspond au domaine du *proche infrarouge* pour lequel le faisceau est encore visible dans les tons rouge-bleu.

La figure 1.1 donne une représentation schématique du métal. Les ions $+$ occupent des positions quasi-fixes qui forment le réseau cristallin baigné dans un gaz d'électrons (en gris sur la figure). La théorie des bandes d'énergie permet de décrire la dynamique électronique ultra-rapide de l'absorption d'une impulsion sub-picoseconde par un gaz d'électrons [KIT 69] [ASH 76]. La contribution électromagnétique à l'absorption d'énergie demeure et sera discutée dans la suite.

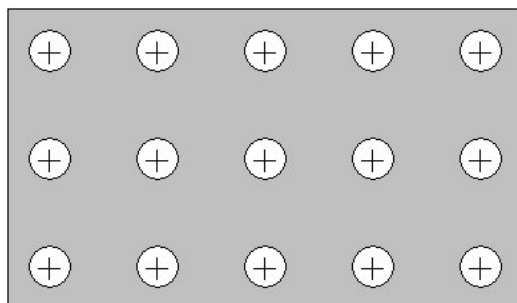


FIG. 1.1 – *Modèle schématique d'un cristal métallique à deux dimensions. Les charges $+$ symbolisent les ions formant le réseau périodique. Ces ions sont baignés dans un nuage d'électrons libres de conduction. Ce modèle est particulièrement bien adapté aux métaux simples.*

Dans ce traitement quantique du solide, à une température T , la densité d'états électroniques $n(E)$ est représentée en fonction de l'énergie E par une distribution de Fermi-Dirac représentée sur la figure 1.2a. L'énergie E_F représente l'énergie de Fermi du système électronique. Il s'agit du dernier niveau d'énergie occupé à la température de $0K$. Cette distribution de densité d'états représente donc un système électronique thermalisé. Sous cette condition, on peut associer une température au gaz d'électrons.

En vertu du principe d'exclusion de Pauli, lorsqu'un photon d'énergie $h\nu$ in-

teragit avec un métal, seuls les électrons dont l'énergie est comprise entre E_F et $E_F - h\nu$ peuvent absorber l'énergie du photon. La distribution de Fermi-Dirac prend alors la forme représentée sur la figure 1.2b.

L'absorption de ces premiers photons libère des états entre E_F et $E_F - h\nu$, ce qui permet l'absorption de photons par des niveaux électroniques situés entre $E_F - h\nu$ et $E_F - 2h\nu$. La distribution électronique prend alors l'allure donnée par la figure 1.2c.

Si l'on tient le même raisonnement, de part en part, l'absorption de plusieurs photons mène à une distribution de la densité d'états électroniques *en escalier* ; libérant ainsi des états d'énergie de plus en plus basse (figure 1.2d).

Le système électronique, dans les instants suivant l'interaction, est donc hors équilibre thermodynamique. La distribution de sa densité d'états est représentée par la figure 1.2d. Ce n'est qu'à la suite d'un phénomène de relaxation que le gaz d'électrons va se thermaliser et retrouver une densité d'états régie par une distribution de Fermi-Dirac (Figure 1.2a). Sous cette condition, une température électronique peut être associée aux électrons. Ceci est traité dans le prochain paragraphe.

Cette description extrêmement schématique permet de comprendre l'idée générale de l'absorption. De nombreuses recherches sont menées dans l'étude de ces phénomènes hors équilibre [KNO 99] [MAT 99].

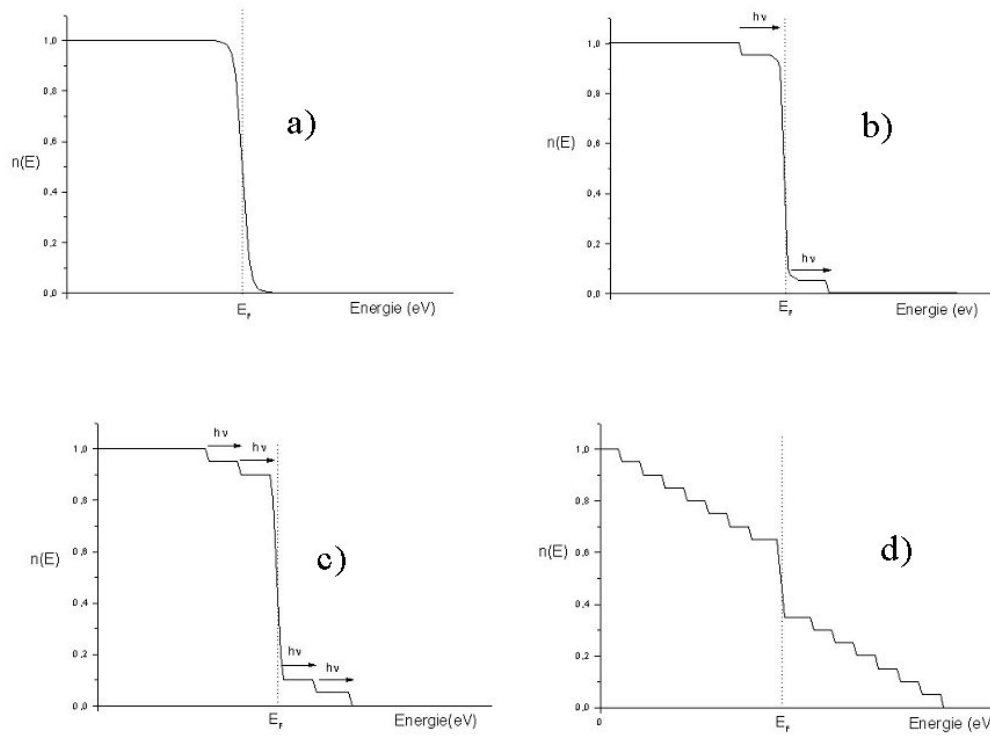


FIG. 1.2 – Densités d'états électroniques en fonction de l'énergie. a) En équilibre thermique : la distribution est une distribution de Fermi-Dirac. b) Dans les premiers instants suivant l'absorption de photons d'énergie $h\nu$. Le système est hors équilibre. c) L'absorption des premiers photons a libéré des états entre E_F et $E_F - h\nu$ et l'absorption par les niveaux situés dans la gamme d'énergie comprise entre $E_F - h\nu$ et $E_F - 2h\nu$ est possible. d) De proche en proche, la distribution électronique prend la forme d'une distribution en escalier.

1.1.2 Processus de relaxation

Nous avons présenté le processus d'absorption en utilisant les densités d'états électroniques des métaux. Etant donnés les éclaircissements mis en jeu dans les interactions que nous considérons, ce sont les électrons qui reçoivent l'énergie de l'impulsion laser. La densité d'états électroniques est alors décrite par une fonction en marches d'escalier comme présentée sur la figure 1.2d. Cette distribution n'est pas une distribution de Fermi-Dirac, ce qui signifie que ces électrons sont hors équilibre thermodynamique. On ne peut pas leur associer une température.

Parmi les processus de relaxation, trois grandes classes doivent être distinguées :

- *Les processus radiatifs.*

Alors qu'ils sont le mode quasi exclusif dans les atomes, ils ne concernent pratiquement que les semi-conducteurs. Ils sont minoritaires dans les métaux par le fait qu'ils impliquent une recombinaison électron-trou qui se déroule sur des temps de l'ordre de 0.1 à 1 femtoseconde. Ils n'entrent donc pas dans le cadre de ce travail.

- *Les processus de piégeage.*

Ils sont propres aux matériaux isolants et concernent principalement l'interaction entre un électron de conduction et un trou de valence.

- *Les processus de collision.*

Ils sont le résultat de deux types de collisions : les collisions électron-électron et les collisions électron-phonon. L'ensemble de ces deux processus forme les processus dits *thermiques*. Ils sont dominants dans les métaux et leur étude est la base des interactions laser-matière en régime sub-picoseconde.

Description des processus de collision

◇ COLLISIONS ÉLECTRON-ÉLECTRON

Avant de pouvoir parler de température électronique, les électrons doivent être en équilibre thermodynamique et donc être décrits par une distribution de Fermi-Dirac. Les électrons initialement excités par l'impulsion forment une distribution électronique hors équilibre présentée sur la figure 1.2d. Ces électrons excités optiquement se thermalisent par collisions avec les autres électrons. En effet, étant données les densités électroniques relativement élevées, les collisions entre électrons sont favorisées. La fin de cette étape de relaxation électron-électron engendre une distribution électronique de Fermi-Dirac. Une température peut alors être associée aux électrons et une diffusion thermique au sein du gaz d'électrons peut alors commencer.

Une fois la thermalisation des électrons effectuée, le second mécanisme de relaxation de l'énergie dans les métaux devient actif. Il s'agit du processus thermique de collisions électron-phonon. Ce processus est déterminant dans

la réponse du métal à l'excitation électromagnétique. Il représente en effet, le transfert d'énergie du bain d'électrons au réseau d'ions et donc le chauffage du matériau.

◇ COLLISIONS ÉLECTRON-PHONON

Pour décrire les interactions entre les électrons, porteurs de l'énergie électromagnétique, et les ions, nous nous plaçons dans le cadre de l'approximation de Born-Oppenheimer. Celle-ci consiste à supposer que les ions du réseau bougent beaucoup plus lentement que les électrons qui les entourent. Les ions sont alors considérés comme des masses fixes.

Si on appelle \mathbf{r}_i la position instantanée de l'électron et $\mathbf{R}_{n\alpha}$ la position de l'ion α dans la maille n , l'hamiltonien d'interaction entre un électron et les ions de la maille, s'écrit [PET 00] :

$$H(\mathbf{r}_i) = \sum_{n,\alpha} V_\alpha(\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_{n\alpha}) \quad (1.1)$$

avec V_α le potentiel créé par l'ion.

Dans notre cas, pour prendre en compte l'interaction électron-phonon, on considère de très faibles déplacements des ions autour de leur position d'équilibre. Nous faisons un développement au premier ordre de la théorie des perturbations dans l'approximation de Born-Oppenheimer. C'est-à-dire que l'on suppose que le déplacement des ions autour de leur position d'équilibre est faible :

$$\mathbf{R}_{n\alpha} = \mathbf{R}_{n\alpha}^0 + \delta\mathbf{R}_{n\alpha} \quad (1.2)$$

où $\mathbf{R}_{n\alpha}^0$ est la position de l'ion à l'équilibre et $\delta\mathbf{R}_{n\alpha}$ le déplacement par rapport à cette position.

On peut décrire les vibrations du réseau d'ions à l'aide d'un ensemble d'oscillateurs harmoniques couplés. Chaque mode de vibration de ce système est caractérisé par un vecteur d'onde \mathbf{q} et une pulsation $\omega_{\mathbf{q}}$. Un phonon désigne alors un quantum d'énergie associé à un mode de vibration. L'interaction électron-phonon est alors décrite comme une collision entre un électron et un phonon au cours de laquelle le phonon est absorbé ou émis. La représentation schématique de cette interaction est donnée en figure 1.3.

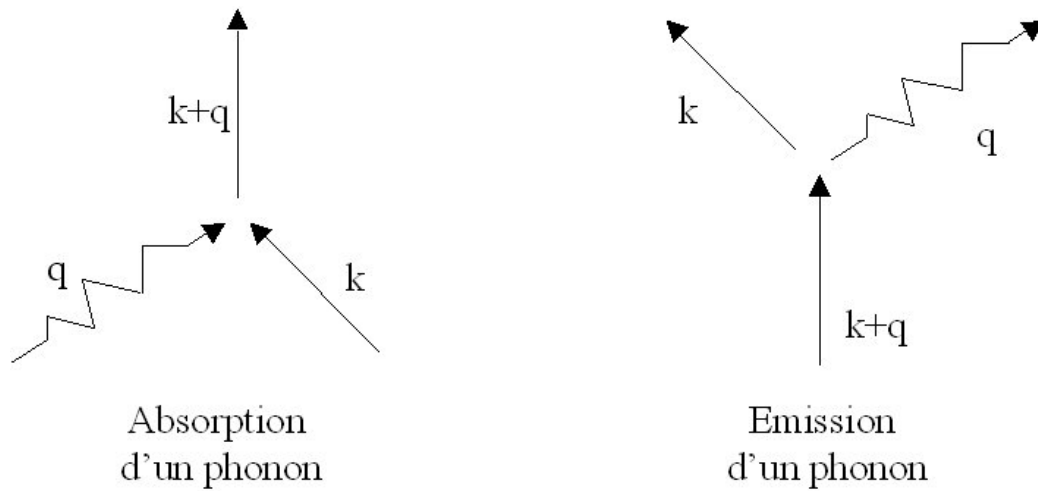


FIG. 1.3 – Représentation schématique d'une collision électron-phonon. À gauche, absorption d'un phonon, à droite, émission d'un phonon.

L'approche du MDT, plutôt que de considérer ces processus individuels, consiste en une approche macroscopique des interactions électron-réseau. Le métal est alors traité comme la dissociation d'un gaz d'électrons et d'un

réseau d'ions. Ces deux entités sont alors vues comme deux systèmes thermodynamiques à l'équilibre interne. A chacun de ces systèmes est associée une température ; T_e pour la température électronique et T_i pour la température du réseau d'ions. Le couplage électron-phonon apparaît alors sous la forme d'un terme proportionnel à la différence de température entre ces deux entités, $g \cdot (T_e - T_i)$, où g est un paramètre phénoménologique représentant les échanges d'énergie entre les électrons et les ions du réseau. Le paramètre g dépend fortement du métal et sa valeur est directement responsable de la réponse de la matière à l'impulsion sub-picoseconde.

Après la présentation des processus d'absorption et de relaxation de l'énergie, nous présentons les fondements du modèle à deux températures qui se trouve dans l'étude de la dynamique de ces processus.

1.1.3 Analyse dynamique

La raison pour laquelle l'utilisation d'impulsions ultra-brèves entraîne un traitement spécifique de l'interaction laser-matière par l'utilisation du MDT provient des temps caractéristiques des relaxations des électrons et du réseau. La figure 1.4 résume les trois phases distinctes de relaxation d'électrons excités optiquement dans un métal. La source provient du travail de Hohlfeld *et al.* sur les dynamiques électron-réseau à la suite d'impulsions ultra-brèves [HOH 00] [HOH 98] [WEL 98].

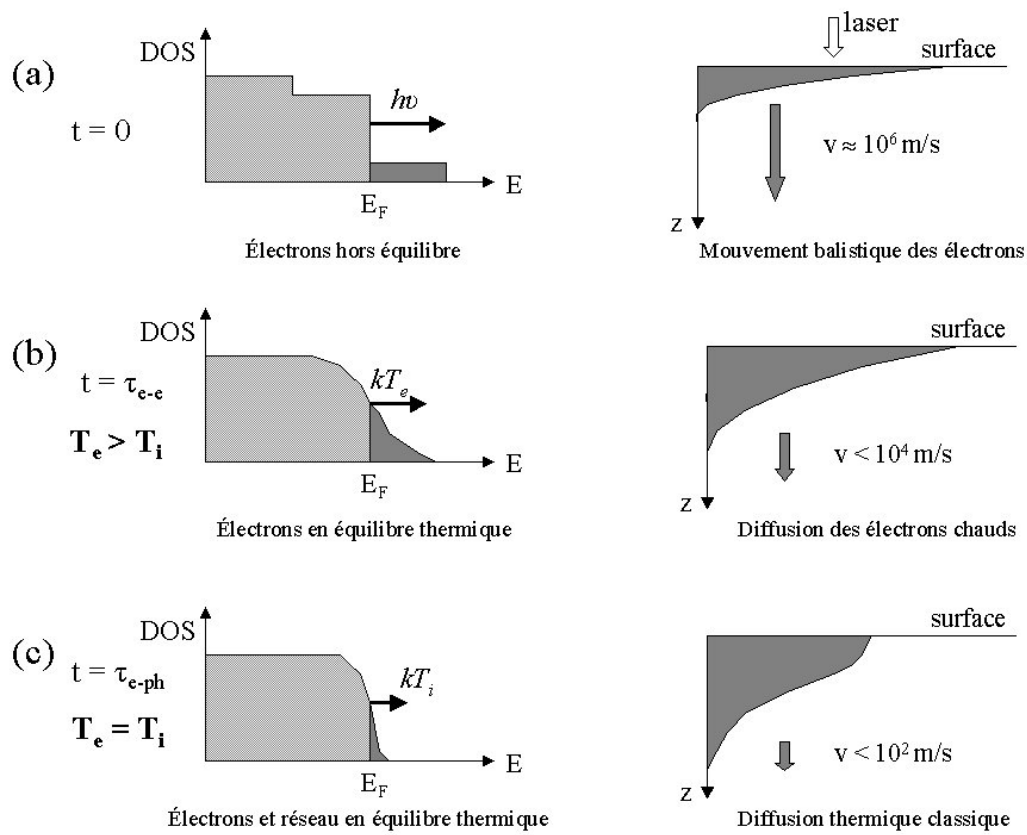


FIG. 1.4 – Trois phases distinctes de la relaxation d'électrons excités optiquement dans un métal [HOH 00].

Dans la figure 1.4, les représentations graphiques de gauche donnent la densité d'états électroniques en fonction de l'énergie. Celles de droite représentent les mouvements mis en jeu dans la cible. Chacune des trois phases est représentée.

- La première phase, notée (a), concerne l'absorption du rayonnement laser en surface de l'échantillon à $t = 0$. On retrouve une représentation de la densité d'états en marche d'escalier à la suite de l'absorption d'un premier photon et en vertu du principe de Pauli. Les électrons qui ont reçu l'énergie électromagnétique de l'impulsion sont hors équilibre thermodynamique et se déplacent vers l'intérieur de l'échantillon à une vitesse de l'ordre de $10^6 m/s$. Ces électrons sont appelés les *électrons balistiques* et seront discutés dans la suite. Le mouvement de ces électrons balistiques est en compétition avec un autre processus qui est l'établissement d'une température électronique par collisions électron-électron entre les électrons excités et les électrons proches du niveau de Fermi. Une fois qu'un équilibre thermique est atteint parmi les électrons, la deuxième étape débute.
- Le temps de départ de cette phase est noté $t = \tau_{th-ee}$, il s'agit du temps de thermalisation des électrons - thermalisation par collisions électron-électron. Ces électrons *chauds* forment une distribution de Fermi-Dirac avec une température électronique T_e bien définie. Les températures électroniques sont à cet instant très élevées tandis que le réseau demeure à température ambiante. Le gradient de température électronique entraîne un flux de diffusion de ces électrons chauds vers l'intérieur du matériau à une vitesse beaucoup plus lente que celle des électrons balistiques ($v < 10^4 m/s$). La longueur de diffusion des

électrons chauds est déterminée par l'intensité du couplage électron-phonon qui refroidit le gaz d'électrons au détriment du réseau. Durant toute cette phase, la température des électrons est supérieure à la température des ions T_i .

- La troisième phase débute à $t = \tau_{th-eph}$. Le couplage électron-phonon a porté les électrons à l'équilibre thermodynamique avec le réseau d'ions ($T_e = T_i$). Le transport d'énergie dans la matière se fait dès lors par diffusion thermique classique au sein du réseau. A partir de ce moment, un modèle classique de diffusion à une température suffirait.

La question centrale pour la justification de l'utilisation d'un modèle à deux températures est la valeur des temps τ_{th-ee} et τ_{th-eph} . Leur détermination a fait l'objet de nombreuses recherches. L'arrivée des sources impulsionnelles femtosecondes a permis le développement de techniques particulières, dont la spectroscopie femtoseconde, qui donne accès à la mesure de phénomènes ultra-rapides et permet de sonder des états hors équilibre de la matière à l'échelle de quelques femtosecondes.

◇ RAPPEL DE LA TECHNIQUE POMPE-SONDE

L'étude de la dynamique des phénomènes ultra-rapides est limitée par l'électronique des détecteurs à des échelles de temps de l'ordre de 10 à 100ps. Depuis le développement des sources lasers femtosecondes ces quinze dernières années, la spectroscopie laser permet d'étudier les phénomènes tran-

sitoires très rapides dans des domaines allant de la physique à la chimie ou la biologie, à des échelles de temps sub-picosecondes.

Le principe de la technique pompe-sonde consiste à combiner l'utilisation de deux impulsions lumineuses synchronisées et présentant un décalage temporel ajustable finement. La première impulsion, dite "pompe", déclenche la dynamique du système étudié. La seconde impulsion, la "sonde", interagit avec le système perturbé après un temps d'évolution bien défini et réglable. Dans le cas de l'étude de la dynamique électronique dans les métaux, la technique pompe-sonde est principalement utilisée pour mesurer les températures électroniques du métal dans les instants suivants l'interaction. Comme le rappellent Hohlfeld *et al.* [HOH 00], une lumière en dessous de la fréquence plasma est en partie absorbée et en partie réfléchiée par la surface d'un métal. La température électronique ne dépend dans ce cas que très faiblement de la réflectivité. Ce résultat devient caduque lorsque l'on s'intéresse aux transitions interbandes dans les métaux nobles. La figure 1.5 représente la densité d'états dans l'or à des températures électroniques élevées. L'encadré propose les changements de réflectivité calculés à des énergies proches de la transition entre la bande d et la bande s/p , pour différentes températures électroniques. Ces courbes sont basées sur une dépendance en fréquence et en température de la fonction diélectrique.

La détermination expérimentale de la température électronique consiste à mesurer des changements de réflectivité. En effet, les propriétés optiques des matériaux sont décrites par la fonction diélectrique. Plusieurs modèles de fonction diélectrique dans les métaux ont été proposés. Cette fonction diélectrique est calculée à partir de la distribution électronique. Elle est par

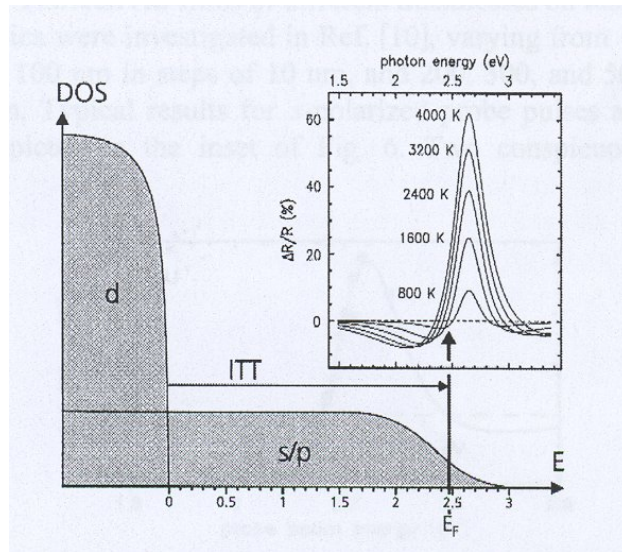


FIG. 1.5 – *Densité d'états dans l'or pour des températures électroniques élevées. Le cadre donne les calculs des variations de la réflectivité pour différentes températures en fonction de l'énergie de la sonde [HOH 00]. DOS : Density Of States.*

conséquent reliée à la température des électrons. La connaissance de la fonction diélectrique permet de remonter à la température du gaz d'électrons. Dans le cas des métaux nobles (Figure 1.5), l'impulsion pompe vient perturber la distribution électronique de la bande s/p . Le faisceau sonde vient exciter les transitions interbandes entre la bande d et la bande s/p et permet une mesure de la nouvelle distribution électronique de la bande s/p . On a alors accès à la température électronique.

◇ DYNAMIQUE ÉLECTRONIQUE

Le Modèle à Deux Températures traite de l'évolution temporelle de l'énergie thermique contenue dans les distributions électroniques et des phonons. La question sous-jacente à sa mise en oeuvre est, en premier lieu, l'établissement d'une température électronique. La question de la thermalisation des électrons excités a fait l'objet de nombreuses recherches. La durée de cette phase de relaxation est déterminée par le taux de collision électron-électron. Celui-ci dépend de la densité d'états au niveau de Fermi [WEL 99]. Les travaux expérimentaux de Sun *et al.* [SUN 94] sur la détermination du temps de relaxation électron-électron (τ_{th-ee}) utilisent la thermomodulation de la réflexion et de la transmission. Ils utilisent la technique pompe-sonde sur des films fins d'or dans le régime de faible perturbation, c'est-à-dire pour des fluences ² de l'ordre de $2.5 - 100 \mu J/cm^2$. Un faisceau pompe infra-rouge est utilisé pour chauffer la distribution électronique. Le faisceau sonde issu de la pompe, est doublé en fréquence afin d'exciter les transitions entre la bande d et la surface de Fermi. Aux densités d'énergie utilisées, le temps de thermalisation des électrons est de l'ordre de $500 fs$. Avec la même technique d'investigation Fann *et al.* ont mesuré des temps de thermalisation de l'ordre de $600 fs$ pour des énergies entraînant une variation de température électronique de l'ordre de $400 K$ [FAN 92a] [FAN 92b]. En effet, comme le rappellent Del Fatti *et al.*, il est habituel de caractériser l'énergie injectée par la pompe en définissant une élévation équivalente de température électronique que subirait un gaz d'électrons initialement thermalisé [DEL 00]. Toujours sur des films d'or, Suarez *et al.* mesurent le temps moyen entre deux collisions

²Fluence = Densité d'énergie par unité de surface.

électron-électron et entre deux collisions électron-phonon [SUA 95]. Ils utilisent des impulsions femtosecondes délivrant une fluence de $0.31 mJ/cm^2$. Ils montrent que dans les premiers instants suivants l'excitation, le temps moyen entre deux collisions électron-électron (e-e) est très faible devant celui entre deux collisions électron-phonon (e-ph). Ce résultat est une signature du fait que les collisions électron-électron sont les processus dominants immédiatement après l'impulsion. Ils montrent de plus que le processus de collision e-e diminue après $20 fs$ et que le processus de collision e-ph ne devient dominant qu'après des temps de l'ordre de la demi-picoseconde. Ces résultats sont sensiblement différents de ceux proposés par Sun *et al.* ou Fann *et al.*, mais les fluences mises en jeu sont différentes.

A ce titre, le travail de thèse de J. Hohlfeld apporte des précisions sur le temps caractéristique de relaxation électron-électron [HOH 98]. En effet, à partir de l'équation de Boltzmann qui donne la variation au cours du temps de la densité d'électrons et de la théorie des liquides de Fermi [PIN 66] [GRO 92], il aboutit à une expression de τ_{th-ee} de la forme :

$$\tau_{th-ee} \approx \frac{A}{S_{ee} \cdot T_{e,max}^2} \quad (1.3)$$

avec $A = 1.86 \cdot 10^7 K^2/eV^2$.

S_{ee} est la constante caractéristique de collisions e-e, et $T_{e,max}$ est la température maximale atteinte par les électrons. Les valeurs typiques données par l'auteur sont : $\tau_{th-ee}(300K) \approx 3.4 ps$, $\tau_{th-ee}(1000K) \approx 310 fs$, $\tau_{th-ee}(5000K) \approx 12 fs$. Il montre de plus que $T_{e,max}^2$ croît linéairement avec la fluence absorbée,

notée F_{abs} . Ainsi, il est montré que le temps total de thermalisation du gaz d'électrons décroît lorsque la fluence du laser augmente. On a $\tau_{th-ee} \propto 1/F_{abs}$. Comme nous le verrons par la suite, les fluences mises en jeu dans notre modélisation entraînent des température électroniques maximales de plusieurs milliers de Kelvin. Dans ces conditions τ_{th-ee} est de l'ordre de la dizaine de femtosecondes. Les impulsions fournies par la source du laboratoire sont typiquement de l'ordre de $200fs$. La thermalisation des électrons est ainsi considérée comme très rapide devant la durée de l'impulsion. Cependant, l'utilisation de ce modèle trouve sa justification dans le temps caractéristique de relaxation électron-phonon, τ_{th-eph} .

◇ DYNAMIQUE DU RÉSEAU

La dynamique de relaxation du réseau permet de déterminer le temps τ_{th-eph} . C'est-à-dire le temps nécessaire au système électrons-réseau pour rentrer en équilibre thermodynamique. Kaganov *et al.* ont été les premiers, en 1957, à considérer l'établissement de l'équilibre thermique entre les électrons et le réseau dans des métaux par l'intermédiaire du MDT [KAG 56] [KAG 59] [GIN 55]. En travaillant sur l'émission d'électrons à partir de surfaces métalliques exposées à des impulsions laser ultra-brèves, Anisimov *et al.*, en 1974, ont utilisé le résultat de Kaganov *et al.* qui donne l'expression de l'énergie transférée, par unité de volume et par unité de temps, des électrons au réseau d'un métal :

$$\left[\frac{dU}{dt}\right]_{e-ph} = g \cdot (T_e - T_i) \quad (1.4)$$

Où T_e et T_i sont respectivement les températures électroniques et du réseau et g est appelée la *constante de couplage électron-phonon*. Dans l'hypothèse où $T_e, T_i \gg \theta_D$, avec θ_D définissant la température de Debye, g est indépendant des températures. Les auteurs estiment alors que le temps de relaxation e-ph est de l'ordre de C_i/g , où C_i est la chaleur spécifique du réseau. Dans le cas des métaux, ce rapport vaut typiquement $10^{-10}s$, soit une centaine de picoseconde. Les mesures expérimentales de Sun *et al.* [SUN 94] et de Suarez *et al.* [SUA 95] donnent des valeurs de τ_{th-eph} allant de quelques picosecondes à quelques dizaines de picosecondes. Kanavin *et al.*, dans leur travail sur le transport de la chaleur par les électrons, parlent d'une valeur de τ_{th-eph} supérieure à la picoseconde pour la majorité des métaux [KAN 98].

Le temps caractéristique de couplage entre les électrons initialement chauffés par l'impulsion laser et le réseau d'ions resté à température initiale est donc supérieur à la picoseconde dans les métaux. Pour les interactions mettant en jeu des impulsions de durée inférieure au temps τ_{th-eph} , la violation de l'équilibre électrons-réseau devient importante. La prise en compte des phénomènes thermiques dans les métaux pour des temps inférieurs à la picoseconde nécessite de traiter séparément les électrons et le réseau d'ions.

Le modèle à deux températures prend alors toute sa signification. Le schéma ci-dessous représente la puissance instantanée d'une impulsion en fonction de sa durée pour l'interaction laser-métal. Les régimes nanoseconde et femtoseconde sont comparés (Figure 1.6).

Dans le cas nanoseconde, la durée de l'impulsion (τ_{pn}) est largement

supérieure à τ_{th-eph} . Le gaz d'électrons et le réseau d'ions forment un seul ensemble adiabatique. Nous sommes dans le cas habituel de la diffusion de la chaleur à une température. En régime femtoseconde, la durée de l'impulsion (τ_{pf}) est inférieure à τ_{th-eph} et le découplage entre les électrons et le réseau devient important. La réduction de la durée d'impulsion permet d'atteindre des puissances instantanées très élevées en régime femtoseconde.

1.2 Mise en place

Proposé pour la première fois par Anisimov *et al.* [ANI 74] en 1974, le modèle à deux températures traite le gaz d'électrons et le bain de phonons comme deux systèmes distincts. Il suppose que chacun de ces deux systèmes est en équilibre thermique et que la température de chaque système obéit

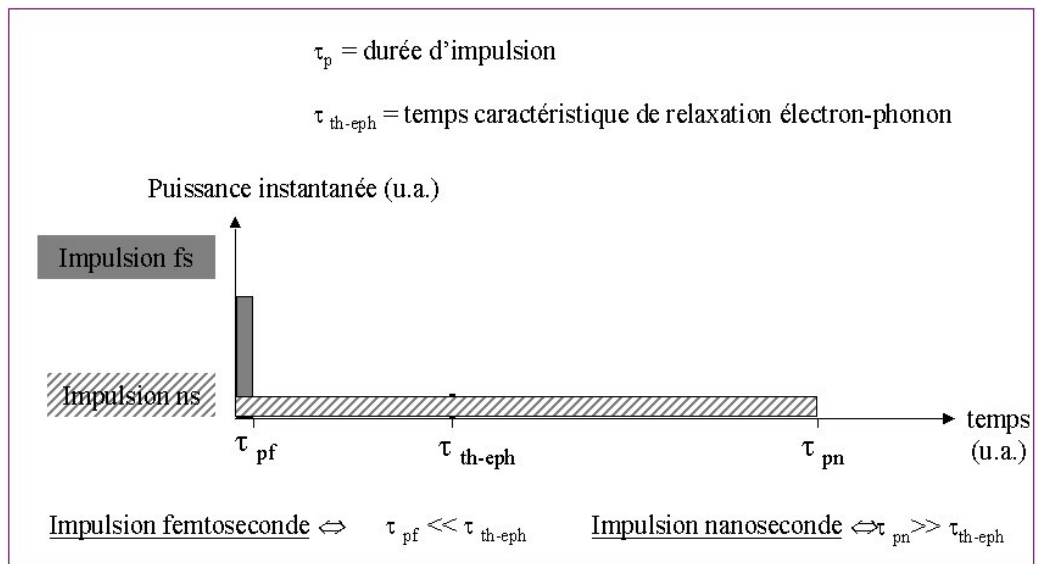


FIG. 1.6 – Représentation schématique de la durée d'impulsion dans les cas femtoseconde et nanoseconde.

à la loi de Fourier. Son écriture est par conséquent un système d'équations différentielles couplées :

$$\begin{cases} C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla(K_e \nabla T_e) - g \cdot (T_e - T_i) + S(r, z, t) \\ C_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = \nabla(K_i \nabla T_i) + g \cdot (T_e - T_i) \end{cases} \quad (1.5)$$

Les termes T_e et T_i représentent respectivement les températures électroniques et du réseau d'ions. C_e et C_i sont les chaleurs spécifiques des deux sous-systèmes et K_e et K_i sont les conductivités thermiques. Le terme g est la constante de couplage électron-phonon et représente la force du couplage entre le gaz d'électrons et les ions. Enfin, $S(r, z, t)$ est la densité volumique de puissance déposée par une impulsion laser dans le gaz d'électrons.

1.2.1 Chaleur spécifique

◇ CHALEUR SPÉCIFIQUE DU GAZ D'ÉLECTRONS

Le problème de la détermination de la chaleur spécifique du gaz d'électrons dans les métaux fut l'une des plus grandes difficultés dans les premiers développements de la théorie électronique des métaux. En effet, la mécanique statistique classique prévoit une chaleur spécifique de $\frac{3}{2}k_B$ par particule libre - k_B étant la constante de Boltzmann [KIT 69]. Un système avec N particules présente par conséquent une chaleur spécifique de $\frac{3}{2}Nk_B$. L'expérience montre que les valeurs effectivement mesurées ne dépassent par un pour cent de cette valeur.

L'explication à cette différence vient du principe d'exclusion de Pauli et de

la fonction de distribution de Fermi. Lorsqu'un échantillon est chauffé depuis le zéro absolu jusqu'à une température T , tous les électrons ne gagnent pas une énergie $\sim k_B T$ mais seuls ceux dont les orbitales sont situées dans une bande d'énergie de largeur $k_B T$ autour du niveau de Fermi peuvent être excités thermiquement. Ceci fournit l'explication quantitative à la mesure des chaleurs spécifiques des électrons et rejoint le raisonnement fait pour l'approche par la structure en bandes d'énergie du paragraphe 1.1.4.

Etant données les puissances apportées par la source laser utilisée, même dans le cas du régime femtoseconde, les températures électroniques maximales atteintes sont largement inférieures à la température de Fermi T_F du métal considéré - typiquement $T_F \approx 5 \cdot 10^4 K$. Dans ces conditions, on peut utiliser l'expression de la chaleur spécifique d'un gaz d'électrons libres donnée par la théorie de Sommerfeld. Le résultat s'écrit :

$$C_e = \frac{1}{2} \pi^2 N k_B \cdot \frac{T_e}{T_F} \quad (1.6)$$

Où N est le nombre d'électrons du système, k_B est la constante de Boltzmann et T_F est la température de Fermi du métal.

Nous écrirons dans la suite pour la chaleur spécifique des électrons :

$$C_e = C'_e T_e \quad (1.7)$$

Où le coefficient C'_e est appelé chaleur spécifique électronique *réduite*. Ce terme dépend du métal considéré.

Le tableau 1.1 donne les valeurs de C'_e pour différents métaux. La dépendance en température de la chaleur spécifique des électrons est une cause de non-linéarité de l'équation associée aux électrons.

◇ CHALEUR SPÉCIFIQUE DU RÉSEAU D'IONS

Dans le cas des ions situés sur un réseau périodique, comme c'est le cas dans un métal, la chaleur spécifique est calculée en prenant en compte les modes de vibration des ions. Chaque ion est approché par le modèle de l'oscillateur harmonique. Pour décrire le solide, on considère donc un ensemble d'oscillateurs harmoniques en équilibre thermique. La population d'un mode de phonon est donnée par la relation de Planck [MAY 99] [KIT 69] :

$$\langle n \rangle = \frac{1}{\exp \frac{\hbar\omega}{k_B T} - 1} \quad (1.8)$$

Où n représente le nombre de phonons et $\hbar\omega$ l'énergie de l'oscillateur harmonique associé.

Historiquement, deux modèles ont été proposés. Le premier est connu sous

métal	C'_e ($Jm^{-3}K^{-2}$)
Au	71
Cu	97
Ni	1065
Al	135

TAB. 1.1 – Valeurs expérimentales de la chaleur spécifique électronique réduite pour l'or [HOH 00], le cuivre [ELS 87], le nickel [WEL 98] et l'aluminium [ELS 87]. L'unité est le $Jm^{-3}K^{-2}$.

le nom de *modèle d'Einstein*³ et le second sous le nom de *modèle de Debye*⁴. Le modèle d'Einstein, dont le but initial était de montrer que les oscillateurs mécaniques devaient être quantifiés au même titre que Planck avait proposé la quantification des rayonnements, suppose que les ondes élastiques du solide ont toutes la même fréquence.

Le modèle de Debye considère plutôt une assemblée d'oscillateurs de fréquences différentes. La difficulté ici réside dans la détermination de la densité de modes où encore densité d'états par unité de fréquence.

Aux très basses températures la loi de Debye donne une dépendance en T^3 de la chaleur spécifique et comme valeur asymptotique aux températures ambiantes la limite classique de Dulong et Petit de $24.943 J mol^{-1} K^{-1}$. La figure 1.7 représente la chaleur spécifique d'un solide dans l'approximation de Debye.

Pour des températures supérieures à la température de Debye θ_D , la chaleur spécifique du réseau est constante et est donnée par la loi classique de *Dulong et Petit*. Elle s'écrit :

$$C_i = 3Nk_B \quad (1.9)$$

Où N est le nombre d'atomes par unité de volume et k_B est la constante de Boltzmann.

Le tableau 1.2 donne les valeurs de C_i pour quelques métaux.

³Modèle proposé en 1907.

⁴Modèle proposé en 1912.

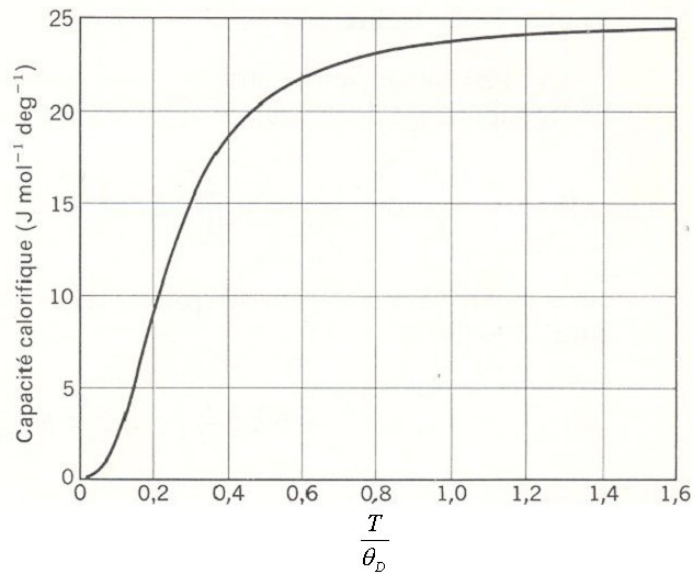


FIG. 1.7 – Chaleur spécifique du réseau d'ions C_i dans le cadre de l'approximation de Debye en fonction du rapport $\frac{T}{\theta_D}$. θ_D est la température de Debye du solide [KIT 69].

métal	C_i ($10^6 J m^{-3} K^{-1}$)
Au	2.5
Cu	3.46
Ni	4.1
Al	2.43

TAB. 1.2 – Valeurs expérimentales de la chaleur spécifique du réseau pour l'or [HOH 00], le cuivre [ELS 87], le nickel [WEL 98] et l'aluminium [ELS 87].

1.2.2 Conductivité thermique

De la même façon que nous avons associé une chaleur spécifique pour chaque sous-système, nous associons une conductivité thermique pour les électrons d'un part et pour les ions d'autre part.

◇ CONDUCTIVITÉ THERMIQUE ÉLECTRONIQUE

Le gaz d'électrons libres permet de décrire en première approximation les électrons de conduction comme un gaz de particules libres. Il est alors possible d'utiliser la théorie cinétique des gaz pour rendre compte des effets électroniques dans les métaux. Bien qu'il s'agisse d'une approximation, elle est suffisante pour décrire la conductivité thermique électronique. C'est l'hypothèse qui est à l'origine du modèle de Drude. D'après la théorie cinétique des gaz, la conductivité thermique K , de particules de vitesse v , de capacité calorifique C et de libre parcours moyen l est :

$$K = \frac{1}{3}Cvl \quad (1.10)$$

Pour le cas du gaz d'électrons, la conductivité thermique électronique K_e s'écrit :

$$K_e = \frac{1}{3}C_e v_F l \quad (1.11)$$

C_e étant la chaleur spécifique des électrons, v_F , la vitesse de Fermi et l le libre parcours moyen de ces électrons.

On définit le libre parcours moyen comme le produit de la vitesse v par le temps de collision τ ⁵ :

$$l = v\tau \quad (1.12)$$

⁵Temps moyen séparant deux collisions.

On définit aussi la fréquence de collision ν comme l'inverse du temps de collision :

$$\nu = \frac{1}{\tau} \quad (1.13)$$

Dans le cas des métaux purs, pour lesquels on peut négliger les collisions avec les défauts du cristal devant les termes de collision électron-électron et électron-phonon, on écrit :

$$\nu = \nu_{ee} + \nu_{eph} \quad (1.14)$$

Les résultats présentés sur la dynamique électronique et du réseau ont montré qu'une fois que les électrons sont thermalisés, le processus de collisions prépondérant est le processus de collisions électron-phonon. Dans son travail de thèse, Hohlfeld a également démontré ce point en calculant les fréquences de collisions électron-électron et électron-phonon [HOH 98]. Ainsi, on peut écrire :

$$\nu \approx \nu_{eph} \quad (1.15)$$

Soit, écrit d'une autre manière :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{ee}} + \frac{1}{\tau_{eph}} \approx \frac{1}{\tau_{eph}} \quad (1.16)$$

Lorsque la température du réseau est supérieure à la température de Debye θ_D , une bonne approximation pour la fréquence de collision électron-phonon est donnée par [KAN 98] [ASH 76] :

$$\frac{1}{\tau_{eph}} \propto \frac{k_B T_i}{\hbar} \quad (1.17)$$

En utilisant ces résultats et l'expression de C_e on peut réécrire K_e sous la forme :

$$K_e = \frac{\pi^2}{2} N k_B \frac{T_e}{T_F} \cdot \frac{1}{3} v_F l = \frac{\pi^2}{3} \frac{N k_B T_e}{m} \cdot \tau_{eph} \quad (1.18)$$

Soit

$$K_e = K_{e0} \frac{T_e}{T_i} \quad (1.19)$$

K_{e0} étant la valeur de K_e lorsque les électrons et le réseau sont en équilibre thermodynamique.

Quelques valeurs expérimentales de K_{e0} sont représentées dans le tableau 1.3. Des expressions plus générales de la conductivité thermique des électrons, valables sur des intervalles de température moins restrictifs ont été proposées, notamment dans les travaux récents de Schmidt *et al.*. Ces auteurs proposent quatre expressions de K_e en fonction des hypothèses sur la variation de la température électronique. Ils montrent que les écarts entre leurs résultats expérimentaux et les calculs obtenus avec le MDT peuvent être conséquents si le choix de K_e est mal adapté [SCH 02].

métal	K_{e0} ($Wm^{-1}K^{-1}$)
Au	318
Cu	401
Ni	91
Al	238

TAB. 1.3 – Valeurs expérimentales de la conductivité thermique des électrons en $Wm^{-1}K^{-1}$.

◇ CONDUCTIVITÉ THERMIQUE IONIQUE

De la même façon que nous avons introduit la conductivité thermique pour les électrons, nous utilisons la théorie cinétique des gaz pour décrire la conduc-

tivité thermique des ions :

$$K_i = \frac{1}{3}C_i v l \quad (1.20)$$

La chaleur spécifique est la chaleur spécifique C_i calculée précédemment ; v est la vitesse des phonons et l est le libre parcours moyen des phonons.

L'étude du rapport K_i/K_e proposé dans la thèse de Hohlfeld montre que celui-ci tend vers des valeurs très faibles [HOH 98]. Ce résultat met en évidence que la contribution des phonons à la conductivité thermique des métaux est négligeable. Aussi, durant l'ensemble de ce travail, nous avons négligé le terme de conductivité thermique des ions devant celui des électrons :

$$K_i \ll K_e \quad (1.21)$$

1.2.3 Constante de couplage électron-phonon

Comme présenté dans la section sur la dynamique du réseau, ce sont Kaganov *et al.* qui ont proposé le MDT en 1957 [KAG 56] [KAG 59] [GIN 55]. Anisimov *et al.* ont repris ce modèle dans le cadre spécifique des interactions d'impulsions lasers ultra-brèves avec les métaux. Leur résultat présenté dans l'équation 1.22 exprime le transfert d'énergie entre les électrons et les phonons en fonction d'un coefficient, g , tel que :

$$\left[\frac{dU}{dt}\right]_{e-ph} = g \cdot (T_e - T_i) \quad (1.22)$$

Dans le cas général, cette constante de couplage électron-phonon dépend de la température. Cette dépendance disparaît pour des températures du réseau

supérieures à la température de Debye. Hohlfeld a vérifié cette hypothèse par le calcul [HOH 98].

Parmi les déterminations expérimentales de g , le travail de Corkum *et al.* fait figure de pionnier [COR 88]. Ces auteurs ont étudié de façon expérimentale la réponse de cibles de cuivre et de molybdène à des excitations lasers allant de $2.5ps$ à $80ns$.

Ils définissent une notion importante pour toute la suite de ce travail. En effet, ils définissent la fluence *seuil de dommage optique* comme la fluence absorbée nécessaire pour que le réseau atteigne la température de fusion en surface. Cette définition provient du fait que l'on peut aisément diagnostiquer la température de fusion d'un métal en mesurant les changements dans sa réflectivité.

Ils reportent la dépendance de la fluence de dommage en fonction de la durée de l'impulsion. Les résultats obtenus sont comparés avec des résultats numériques issus du MDT pour une cible de cuivre. La valeur estimée de g pour ce métal est de $2.0 \times 10^{16} W \cdot m^{-3} \cdot K^{-1}$.

Il existe peu de valeurs expérimentales, et leur dispersion est importante. Ainsi, Elsayed-Ali *et al.* estiment la valeur de g pour le cuivre à $10 \times 10^{16} W \cdot m^{-3} \cdot K^{-1}$ [ELS 87]. Wellershoff *et al.* proposent des résultats numériques issus du MDT [WEL 99]. Ils montrent que leurs résultats numériques rejoignent les résultats expérimentaux de Stuart *et al.* à condition de fixer $g_{Au} = 2.2 \times 10^{16} W \cdot m^{-3} \cdot K^{-1}$ et de considérer une absorption dépendant de la température électronique [STU 96]. La dispersion des valeurs est impor-

tante comme le note Baubeau dans sa thèse [BAU 02].

Le tableau 1.4 donne quelques valeurs de g pour différents métaux.

métal	g ($10^{16}Wm^{-3}K^{-1}$)
Au	2.1
Cu	10
Ni	36
Al	56.9

TAB. 1.4 – Valeurs de la constante de couplage électron-phonon. Au [HOH 00], Cu [ELS 87], Ni [WEL 98], et Al [ZHU 00].

Il est important de noter la différence dans la valeur de g entre les métaux nobles (Cu, Au) et les métaux simples (Al) ou de transition (Ni). Celle-ci va être à l'origine d'une profonde différence de comportement dans la réponse du matériau à l'excitation laser et va donc générer des résultats de micro-usinage différents.

La section suivante présente les hypothèses formulées et les évolutions apportées au modèle.

1.3 Hypothèses d'utilisation

La première remarque concerne les expressions de la chaleur spécifique et de la conductivité thermique des électrons. Ces deux termes dépendent linéairement de la température électronique et induisent par conséquent une double non-linéarité dans l'équation relative aux électrons.

Etant donnée la faible valeur de la conductivité thermique des ions devant celle des électrons, nous avons négligé K_i dans l'équation relative au réseau.

L'adaptation la plus significative concerne le terme source. La section suivante lui est entièrement consacrée.

1.3.1 Le terme source

Le terme $S(r, z, t)$ représente la densité de puissance apportée par une impulsion laser dans le gaz d'électrons. Son expression est la suivante :

$$S(r, z, t) = \begin{cases} F_{abs} \frac{1}{\lambda_0 + \lambda_{bal}} \frac{\exp\left(-\frac{z}{\lambda_0 + \lambda_{bal}}\right)}{1 - \exp\left(-\frac{d}{\lambda_0 + \lambda_{bal}}\right)} \frac{1}{\sqrt{\pi t_0^2}} \exp\left(-\ln 2 \left(\frac{t}{t_0}\right)^2\right) & \text{pour } 0 < r \leq r_0 \\ 0 & \text{pour } r > r_0 \end{cases} \quad (1.23)$$

- r et z représentent respectivement les directions radiale et longitudinale.
- d représente l'épaisseur de la cible modélisée.
- t représente la variable temps.
- F_{abs} est la fluence absorbée par l'échantillon, c'est-à-dire l'énergie par unité de surface absorbée en surface du métal.
- λ_0 et λ_{bal} sont respectivement la profondeur de pénétration optique et la profondeur de pénétration des électrons balistiques dont nous discutons les fondements dans la suite.
- La forme temporelle de l'impulsion est de type gaussienne de largeur à mi-hauteur $2t_0$.

- La condition suivant r impose une forme spatiale à l'impulsion de type *top-hat*. La description de cette forme spatiale de l'impulsion est donnée dans la suite.

Profondeur de pénétration optique : λ_0

C'est la distance sur laquelle une onde électromagnétique pénètre à l'intérieur d'un métal sous forme d'une onde évanescente [KIT 69]. Elle est aussi appelée *épaisseur de peau* et dépend de la longueur d'onde du rayonnement. Le tableau ci-dessous donnent quelques valeurs de λ_0 mesurées expérimentalement sur des échantillons fins présentant une très bonne qualité de surface [PAL 76]. La dispersion de ces valeurs est importante et dépend fortement de la préparation de la surface.

	<i>or</i>	<i>cuiivre</i>	<i>aluminium</i>	<i>nickel</i>
$\lambda_{0,400nm}$	16.2	14.4	6.5	13.5
$\lambda_{0,800nm}$	11.8	12.1	7.5	14.5

TAB. 1.5 – *Profondeur de pénétration optique donnée en nanomètres pour un rayonnement de 400nm et de 800nm [BAU 02].*

Profondeur de pénétration des électrons balistiques : λ_{bal}

Nous avons introduit ce terme au cours du paragraphe 1.1.2 concernant le processus de relaxation de l'énergie. L'étude chronologique reprenait un travail de Wellershoff *et al.*. Ces derniers ont montré que l'étude de l'évolution des réflectivités sur un film d'or en fonction du temps présentait un désaccord entre les résultats expérimentaux et les résultats numériques. L'in-

troduction d'une profondeur de pénétration effective dans le terme source, en complément de la profondeur de pénétration optique permet de reproduire la courbe des résultats expérimentaux. Cette profondeur de pénétration, désignée comme la profondeur de pénétration d'électrons balistiques, a été dans ce cas introduite de façon théorique. Ces électrons balistiques ont été mis en évidence dans les métaux nobles par des expériences pompe-sonde [BRO 87] [SUA 95]. Suarez *et al.*, en mesurant le temps nécessaire pour traverser des films d'or de différentes épaisseurs, ont estimé expérimentalement la vitesse de ce transport balistique à environ $10^6 m \cdot s^{-1}$. Avec des temps caractéristiques de relaxation τ_{th-ee} de quelques dizaines de femtosecondes, λ_{bal} est de l'ordre de la centaine de nm . Hohlfeld *et al.* proposent les valeurs suivantes pour le cuivre et l'or :

métal	λ_{bal} (nm)
Cu	100
Au	105

TAB. 1.6 – Valeurs de la profondeur de pénétration des électrons balistiques pour le cuivre et l'or [HOH 97].

Cette profondeur de pénétration des électrons balistiques est directement reliée au taux de collision e-e. Comme le rappellent Wellershoff *et al.* [WEL 98], ce taux de collisions dépend de la densité d'états électroniques au niveau de Fermi. Les métaux nobles présentent un taux de collision plus faible que les métaux de transition et la pénétration des électrons balistiques y est favorisée. Dans le cas des métaux de transition, la profondeur sur laquelle ces

électrons balistiques pénètrent est de l'ordre de la profondeur d'absorption optique et peut donc être négligée [WEL 99].

Fluence absorbée

Lors de l'incidence d'un faisceau laser sur un métal, une partie de l'énergie est déposée dans le matériau, une autre partie est réfléchie, et enfin, si l'épaisseur de l'échantillon le permet, une partie du faisceau est transmise. Les coefficients de réflexion, de transmission et d'absorption sont délicats à déterminer expérimentalement. En effet, ils dépendent fortement de l'état de surface qui peut, par exemple, augmenter considérablement le coefficient d'absorption par des effets de diffusion des électrons sur la surface [COR 88]. Il a été montré, de plus, que pour de fortes densités d'énergie, les valeurs de l'absorption et de l'épaisseur de peau sont modifiées [MIL 88] [PRI 95]. Les valeurs seuil de densité pour de tels phénomènes sont données de l'ordre de $10 J.cm^{-2}$ [KOM 99].

La fluence seuil de dommage optique est définie comme la fluence nécessaire pour que le réseau atteigne la température de fusion en surface [COR 88]. Expérimentalement, la fusion d'une surface métallique se diagnostique par la technique pompe-sonde et les mesures de changements de réflectivité.

Dans ce travail, le terme F_{abs} qui apparaît dans le terme source correspond à la fluence absorbée par la cible, nécessaire pour atteindre la température de fusion du matériau en surface. La valeur absolue de cette fluence absorbée n'a donc pas une grande signification physique. Dans ce travail, seule est choisie la température maximale atteinte par le réseau. Celle-ci est fixée à la température de fusion.

Forme temporelle de l'impulsion

La forme temporelle de l'impulsion est représentée par une gaussienne. $2t_0$ est la durée d'impulsion qui, dans notre cas, est représentée par la largeur totale à mi-hauteur de cette gaussienne. Le schéma 1.8 représente la forme temporelle typique d'une impulsion de 200fs .

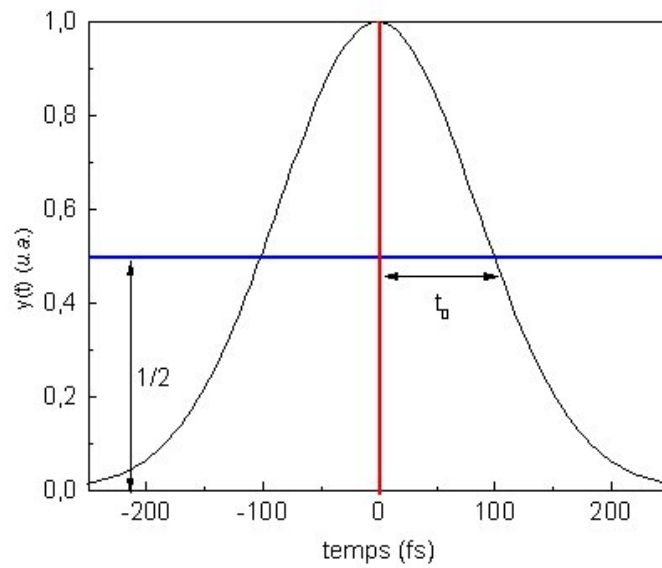


FIG. 1.8 – Représentation schématique donnant la forme temporelle de type gaussienne d'une impulsion de 200fs .

A ce schéma théorique de l'impulsion, nous associons un tracé de la forme temporelle de l'impulsion mesurée par autocorrélation [LEH 03] (Figure 1.9).

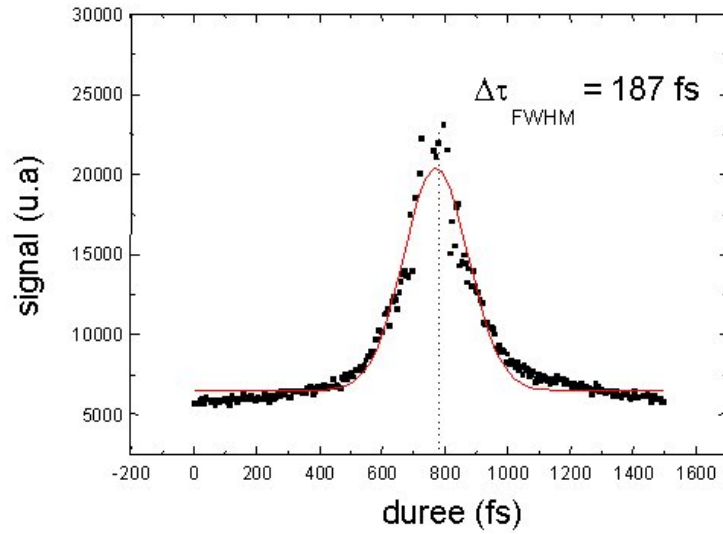


FIG. 1.9 – Tracé de la durée d'une impulsion mesurée par autocorrélation [LEH 03].

Forme spatiale de l'impulsion

Pour les applications de micro-usinage, la distribution spatiale de l'énergie est un paramètre primordial dans la recherche de qualité et la maîtrise des effets de bord.

La répartition de l'intensité d'un faisceau de mode fondamental TEM_{00} se propageant suivant z est de forme gaussienne [LEH 03], classiquement donnée par :

$$I(r, z) = I(0, z) \exp\left(-2\left(\frac{r}{w(z)}\right)^2\right) \quad (1.24)$$

Où $w(z)$ est une fonction décrivant la forme du faisceau focalisé :

$$w(z) = w_0 \left(1 + \frac{z^2}{z_r^2}\right)^{1/2} \quad (1.25)$$

w_0 étant le plus petit rayon du mode considéré (waist) et z_r la longueur de Rayleigh définie par

$$z_r = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (1.26)$$

Ce type de faisceau est la cause d'effets de bord altérant la qualité des expériences de micro-usinage. Comme il a été dit, la fluence présente dans le terme source est choisie de telle sorte que la surface atteigne la température de fusion du matériau. Les énergies mises en jeu sont inférieures au seuil d'ablation du métal. Cependant, dans tous les cas, les bords de la gaussienne stockent une quantité d'énergie qui contribue largement à son échauffement. Pour s'affranchir de ces effets de bord, on réalise les usinages au point image d'un diaphragme placé sur le trajet du faisceau.

Le schéma 1.10 représente deux configurations optiques. La configuration donnée en *a*) représente le condition d'usinage au point focal. Le faisceau incident est un faisceau gaussien. Une lentille convergente est introduite sur le trajet du faisceau et l'échantillon est placé au point focal de cette lentille. La densité d'énergie est maximale en ce point et la forme du faisceau est toujours de type gaussienne. Dans la configuration *b*), un diaphragme est placé sur le trajet du faisceau incident gaussien. Pour cette configuration, l'échantillon n'est plus placé dans le plan focal de la lentille mais dans le plan image du diaphragme. Dans ce plan, le faisceau est un faisceau à bords droits donnant une allure *en haut de forme*, d'où l'appellation *top-hat*.

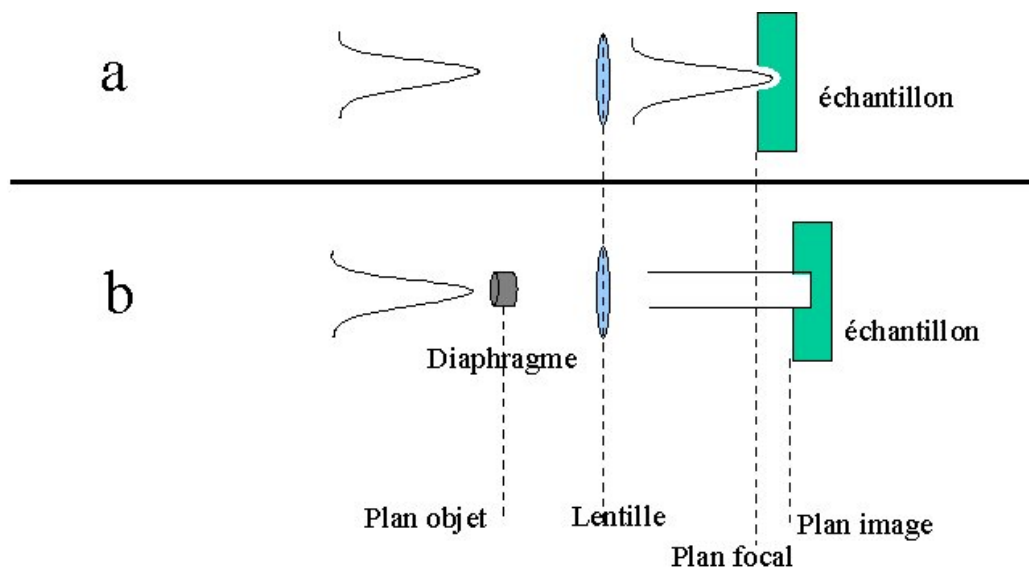


FIG. 1.10 – Schéma de la configuration optique. a) Usinage dans le plan focal. b) Usinage dans le plan image du diaphragme [LEH 03].

Une analyse expérimentale du faisceau en imagerie est représentée sur la figure 1.11.

Cette forme de faisceau de type *top-hat* est prise en compte dans le modèle par la condition d'existence du terme $S(r, z, t)$ suivant r . En effet, au-delà d'un rayon r_0 , la distribution d'énergie est nulle. Cette valeur de r_0 définit les bords du faisceau de forme rectangulaire.

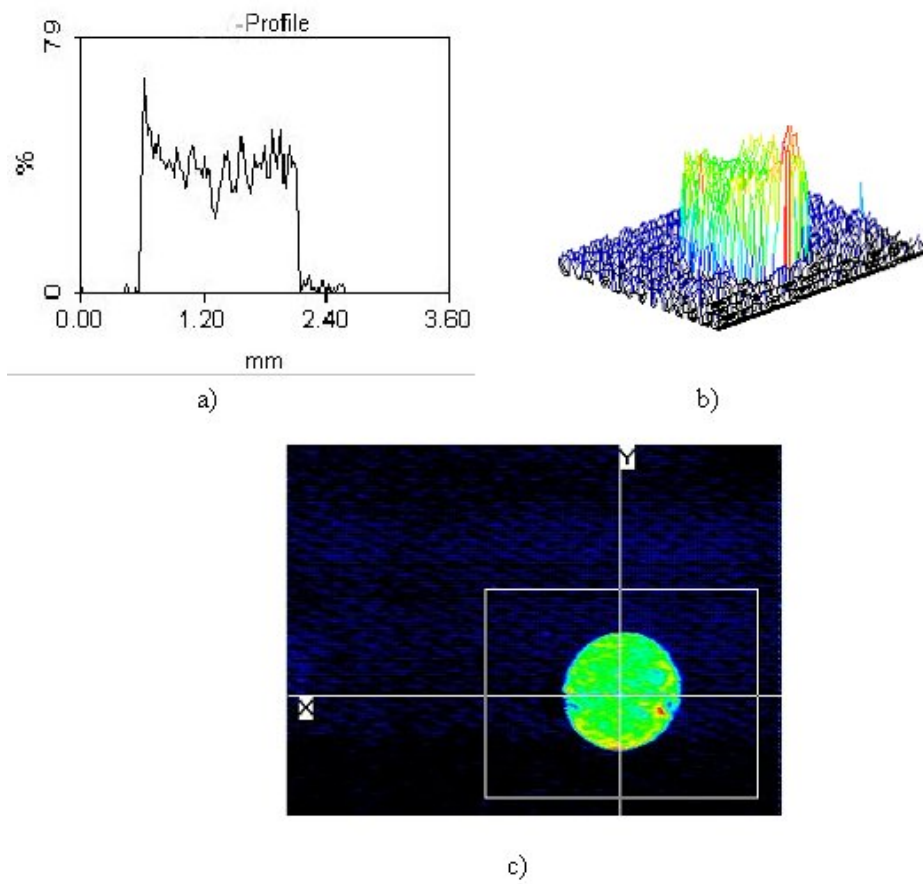


FIG. 1.11 – Analyse de faisceau au point image d'un diaphragme. L'effet de bord présent pour une distribution gaussienne de l'énergie a disparu. a - profil radial 2D. b - Profil 3D. c - Répartition homogène de l'énergie du faisceau [LEH 03].

1.3.2 Le système à résoudre

Les grandeurs physiques qui interviennent dans l'écriture du modèle à deux températures viennent d'être présentées et discutées. Les différentes hypothèses émises permettent de réécrire le système d'équations aux dérivées partielles.

Dans l'équation concernant le réseau d'ions, nous négligeons le terme dû à la conductivité thermique; celle-ci étant très largement inférieure à la contribution électronique.

De plus, les dépendances en température de la conductivité thermique et de la chaleur spécifique électroniques entraînent une double non-linéarité dans l'équation des électrons.

Enfin, on remarque la dépendance en $\frac{1}{T_i}$ de la conductivité thermique électronique.

Finalement, le système que nous utilisons dans l'ensemble de notre modélisation est le suivant :

$$\begin{cases} C'_e \frac{\partial T_e^2}{\partial t} = K_{e0} \nabla \left(\frac{1}{T_i} \nabla T_e^2 \right) - 2g \cdot (T_e - T_i) + 2S(r, z, t) \\ C_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = g \cdot (T_e - T_i) \end{cases} \quad (1.27)$$

Ce système va être résolu par la méthode des éléments finis. Afin de mettre en évidence l'importance de la constante de couplage électron-phonon, les modélisations vont traiter trois types de métaux.

Avant de présenter les résultats numériques, la section suivante rappelle la structure électronique des trois types de métaux étudiés.

1.3.3 Trois types de métaux

Trois types de matériaux cibles vont être modélisés représentant respectivement les métaux "simples", les métaux de transition et les métaux nobles. Le but, pour l'ensemble de ce paragraphe, est de comparer ces trois types de métaux et de mettre en évidence leur différence. Cette différence entraîne une réponse à l'excitation laser propre à chaque type de métal. Pour un métal de chaque famille, les structures en bandes d'énergie sont présentées.

Métaux "simples"

Ce sont les métaux dans lesquels les électrons de conduction sont essentiellement des électrons s et p . Les propriétés électroniques de ces métaux peuvent être déduites de la théorie des électrons libres. Les métaux alcalins sont un très bon exemple avec un seul électron s dans la bande de conduction (Li , Na , K , Rb , Cs). On considère dans cette approche que les électrons des couches profondes font partie du noyau ionique.

De plus, le calcul de la structure de bande est bien confirmé par l'expérience dans le cas de certains métaux bivalents (Zn , Cd), trivalents (Al), ou encore tétravalents (Pb , Sn).

Dans toute la suite de ce travail, le métal représentant la famille des métaux simples sera l'aluminium. Ce choix étant dû aussi bien à ces caractéristiques physiques bien connues qu'à la maîtrise technique de la préparation des échantillons en vue d'analyses expérimentales.

Métaux nobles

Le cas des métaux nobles est un cas tout à fait particulier. En effet, les métaux nobles présentent une structure électronique comportant une bande de conduction formée d'une sous-couche d complète et d'une sous-couche s comportant un seul électron. On distingue trois métaux nobles : Cu , Ag et Au .

Considérons, à titre d'exemple, le cas du cuivre. Sa structure est $[Ar]3d^{10}4s^1$. Dans la théorie de Bloch, on considère 11 électrons par atome évoluant dans le potentiel périodique d'un réseau d'ions Cu^{11+} . Ces électrons se rangent en six bandes. Les 5 premières forment la bande d qui s'étend entre 2 et 5 eV en dessous de l'énergie de Fermi. La 6^{ème} bande forme la bande s qui s'étend de 9 eV en dessous du niveau de Fermi à 7 eV au dessus.

Ainsi, comme dans le cas des métaux simples, on peut considérer que la bande d est suffisamment éloignée du niveau de Fermi pour que ses électrons n'aient qu'une influence très faible sur les propriétés électroniques du métal. Le schéma de la figure 1.12 représente la structure de bande électronique dans le cas du cuivre.

Métaux de transition

Cette famille de métaux englobe les éléments présentant des couches électroniques d ou f incomplètes. Comme le montre la figure 1.13, les bandes s et p forment une seule bande large comme dans le cas précédent du cuivre. La couche d est représentée par une bande plus étroite qui chevauche la bande sp . Contrairement au cas du cuivre, l'énergie de Fermi d'un tel métal se situe à l'intérieur de la bande d . Cette dernière joue donc un rôle important dans

les propriétés électroniques du métal et la structure électronique ne peut donc pas être approchée par un modèle simple.

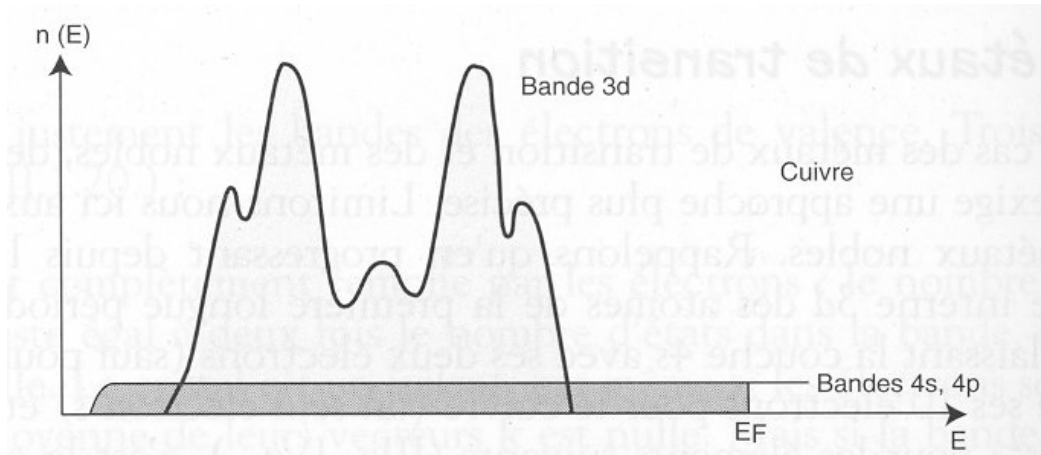


FIG. 1.12 – Schéma de la structure de bande électronique du cuivre [PHI 97].

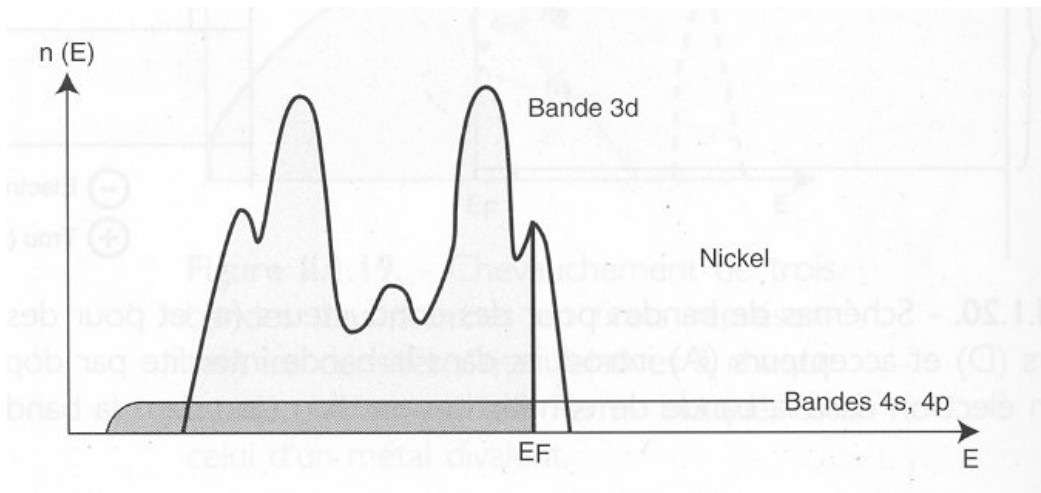


FIG. 1.13 – Schéma de la structure de bande électronique du nickel [PHI 97].

1.4 Conclusion

Intéressés par les applications de micro-usinage laser en mode femtoseconde, nous avons entrepris de comprendre et de mesurer les effets thermiques induits lors d'interactions entre un faisceau d'impulsions laser de durée ultra-brève et une cible métallique. Pour cela, les modes d'absorption de l'énergie électromagnétique dans les métaux ainsi que les modes de relaxation de cette énergie ont été rappelés. Une approche macroscopique de l'interaction laser-métal, basée sur un modèle purement thermique connu sous le nom de *modèle à deux températures*, a été formulée. Ce modèle présente le métal comme un ensemble de deux sous-systèmes différents : les électrons d'une part et le réseau d'ions d'autre part. Le MDT a déjà fait ses preuves dans le traitement de la dynamique électronique ultra-rapide [HOH 97] [SHE 89].

Soucieux de comprendre et de maîtriser la qualité des micro-usinages, nous avons développé une version à deux dimensions du MDT afin de prendre en compte les effets thermiques dans la direction radiale du faisceau laser.

Avant de présenter les démarches expérimentales que nous avons mises au point pour quantifier la Zone Affectée Thermiquement, nous allons, dans le chapitre suivant, présenter la modélisation des effets thermiques et les résultats que nous avons obtenus. Nous prendrons soin, tout au long de ce chapitre, de comparer les régimes d'impulsion nanoseconde et femtoseconde ainsi que la réponse de la matière en fonction du type de métal considéré.

Chapitre 2

Traitement numérique - Résultats

La problématique de la modélisation utilisée est de résoudre numériquement le système d'équations aux dérivées partielles non linéaires représentant le modèle à deux températures. Le but recherché est de comprendre et de mesurer les effets thermiques subis par le métal à la suite du micro-usinage laser. Dans tout ce travail, les cibles réelles ont été modélisées par des coupes axi-symétriques nous permettant de prendre en compte les effets de la diffusion de la chaleur dans la direction du faisceau et dans la direction perpendiculaire à celui-ci (direction radiale). La résolution du système sur une géométrie à deux dimensions nous a amenés à utiliser la technique des éléments finis. Dans ce chapitre, nous présentons en premier lieu la géométrie de notre problème. Nous donnons ensuite un rappel de la technique des éléments finis et présentons le logiciel utilisé ainsi que les hypothèses avancées pour la résolution. La part prépondérante de ce chapitre est consacrée aux résultats numériques et aux conclusions qui ont pu en être tirées.

2.1 Traitement numérique

2.1.1 Géométrie et symétrie de la cible

Quels que soient les montages expérimentaux que nous avons réalisés durant ce travail de thèse, la face de la cible exposée au rayonnement est toujours très grande devant la taille du faisceau laser. Typiquement les ordres de grandeur sont de plusieurs millimètres carré pour la face de l'échantillon contre une taille de faisceau de 30 à 40 μm de diamètre (Figure 2.1).

Dans ces conditions, nous avons choisi de modéliser des cibles cylindriques au centre desquelles est situé l'impact du faisceau. Par raison de symétrie, le

calcul s'est limité à une coupe axi-symétrique de ce cylindre (Figure 2.2).

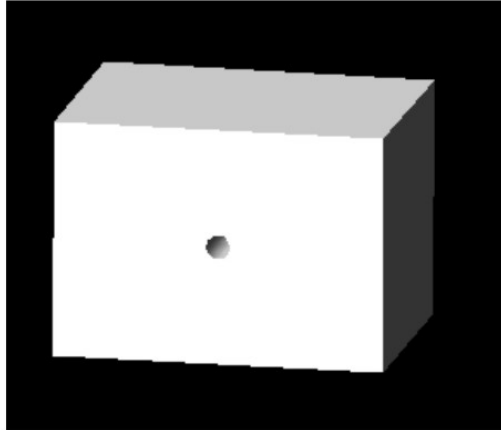


FIG. 2.1 – Schéma d'une cible quelconque représentant les différences d'échelle entre la face irradiée et la taille du faisceau laser.

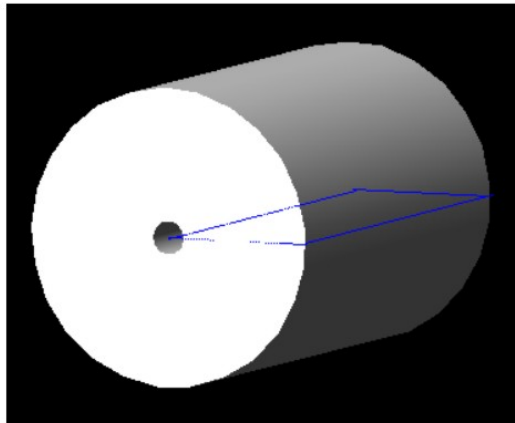


FIG. 2.2 – Schéma d'une cible cylindrique avec en son centre l'impact laser. Par raison de symétrie, on restreint le domaine de calcul à une coupe de ce cylindre dans sa longueur, représentée par le rectangle bleu sur la figure.

La résolution du système des deux équations aux dérivées partielles se fait donc sur un domaine à deux dimensions utilisant un système de coordonnées cylindriques. Une dimension donnant la direction radiale du faisceau, r , et une direction dans l'axe du faisceau, z .

La technique de résolution utilisée est la technique des éléments finis, programmée dans le logiciel Freefem+ [FRE 01]. L'annexe A présente un exemple de mise en données pour un calcul sous Freefem+ ainsi que le calcul du passage des coordonnées cartésiennes aux coordonnées cylindriques.

2.1.2 Méthode utilisée

La méthode des éléments finis utilise un découpage (ou *maillage*) du domaine d'étude Ω en domaines élémentaires ou *éléments finis* [BER 01]. L'union de ces domaines forme le solide Ω et l'intersection de deux domaines élémentaires différents est nulle. Les différents domaines sont connectés entre eux par des *noeuds* (Figure 2.3). L'approximation par éléments finis est alors construite sur chacun des domaines élémentaires à partir des valeurs de la fonction aux noeuds.

L'idée générale de la méthode des éléments finis nécessite le passage à une formulation intégrale faible du problème à résoudre. On distingue ensuite deux principales méthodes de résolution, l'une visant à annuler un résidu, l'autre utilisant le principe de minimisation de l'énergie [PAN 02]. Ces deux méthodes sont bien sûr équivalentes. Pour les mettre en oeuvre, on remplace l'espace des solutions possibles H par un espace de dimension finie H_N , où N est le nombre de noeuds du maillage. La solution dans H_N est donc un vecteur contenant les températures aux N noeuds du maillage. La méthode

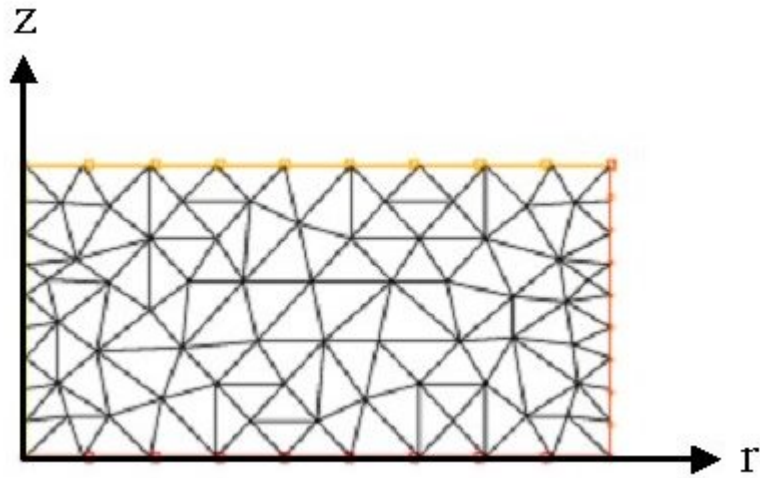


FIG. 2.3 – Exemple d’un maillage typique de notre modélisation. z représente la profondeur de la cible, et donc la direction de l’axe du faisceau laser. r représente la direction radiale. Le point $(0,0)$ sur ce repère représente donc le centre de la cible et de l’impact laser.

des éléments finis est associée à un choix particulier de l’espace H_N . Connaissant les températures aux noeuds, on utilise des fonctions particulières qui permettent d’interpoler la solution dans l’élément.

Pour la mise en oeuvre de la modélisation, la méthode des éléments finis a été utilisée comme outil à travers le logiciel *Freefem+*.

Il s’agit d’un code d’éléments finis écrit en $C++$ et développé par le laboratoire d’analyse numérique de l’université de Paris VI [FRE 01]. Sa fonctionnalité initiale est la résolution de systèmes d’équations aux dérivées partielles à deux dimensions. L’un de ses atouts principaux est l’adaptation automatique du maillage dans les zones de forte variation de la solution. Pour notre problème, cet outil est systématiquement utilisé. En effet, sur la face de

l'impact laser et en bordure du top-hat, de fortes variations de températures apparaissent. L'utilisation du maillage adaptatif permet de minimiser les erreurs de calcul dans ces zones. Concrètement, *Freefem+* s'exécute sur un fichier texte préalablement écrit dans un langage dédié proche du C^{++} . La section suivante présente la modélisation numérique proprement dite. Nous y présentons un exemple de maillage adapté automatiquement à la géométrie du problème.

2.1.3 Modélisation à deux dimensions par éléments finis

Comme nous l'avons vu dans la section 2.1.1, la géométrie de la cible peut se restreindre à une coupe axi-symétrique d'un cylindre de rayon r et de longueur z . Une tel domaine, avec son maillage triangulaire initial, est représenté sur la figure 2.3.

La forme spatiale de type top-hat du terme source est à l'origine d'une adaptation du maillage à proximité du cut-off de la fonction. Une telle adaptation de maillage est représentée sur la figure 2.4. Pour l'ensemble des calculs présentés dans ce travail, nous avons choisi de modéliser une impulsion de $40\mu m$ de diamètre sur une cible de $100\mu m$ de diamètre. L'épaisseur de la cible modélisée a été choisie de $10\mu m$.

La résolution des équations couplées est donc effectuée sur de tels maillages. Cette résolution nécessite l'introduction de conditions aux limites et de conditions initiales. Les inconnues du système calculées aux noeuds sont T_e^2 et T_i . Les conditions aux limites sont écrites en T_e et T_i .

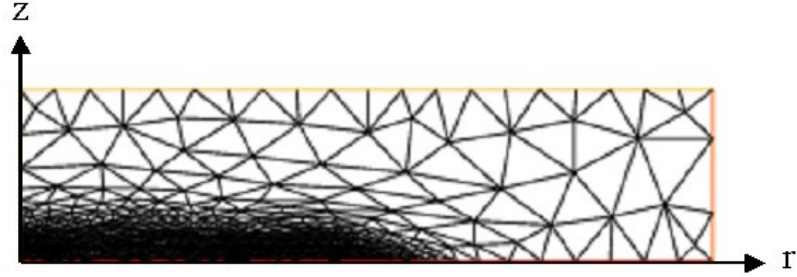


FIG. 2.4 – Exemple de maillage adapté. Les dimensions sont de $50 \mu\text{m}$ suivant r et $10 \mu\text{m}$ suivant z . Le bord du faisceau carré est à $r = 20 \mu\text{m}$, modélisant ainsi un impact laser de $40 \mu\text{m}$ de diamètre en surface d'une cible de $100 \mu\text{m}$ de diamètre.

2.1.4 Conditions initiales et conditions aux limites

Rappelons tout d'abord le système que nous avons à résoudre :

$$\begin{cases} C'_e \frac{\partial T_e^2}{\partial t} = K_{e0} \nabla \cdot \left(\frac{1}{T_i} \nabla T_e^2 \right) - 2g \cdot (T_e - T_i) + 2S(r, z, t) \\ C_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = g \cdot (T_e - T_i) \end{cases} \quad (2.1)$$

- Pour la résolution de l'équation relative aux électrons, nous avons fait le changement de variable $T'_e = T_e^2$. Les valeurs calculées aux noeuds sont donc T_e^2 .
- Ce système est un système non stationnaire et sa résolution nécessite la donnée de conditions initiales. Pour ce faire, nous avons choisi d'associer aux électrons et au réseau d'ions une même valeur de température de 300K qui représente la température ambiante moyenne.
- Quant aux conditions aux limites, elles traduisent la jonction entre la cible

étudiée et le milieu extérieur. Ces conditions sont appliquées sur la frontière du milieu étudié. Elles apparaissent soit sous la forme d'une densité de flux connue q soit sous la forme d'une température connue T .

Les conditions en flux dépendant de la température peuvent représenter des échanges par convection de la forme $q(T) = H(T_{ext} - T)$ où H est un coefficient d'échange thermique ($Wm^{-2}K^{-1}$) et T_{ext} est la température du milieu extérieur¹, ou encore des échanges par rayonnement dans un milieu infini de la forme $q(T) = \sigma\epsilon(T_{ext}^4 - T^4)$ où σ est la constante de Stefan-Boltzmann et ϵ l'émissivité de la surface.

Pour les cas où les densités de flux ne dépendent pas de la température, on parle de *conditions de Neumann*. Ces conditions peuvent traduire une condition d'adiabaticité ($q = 0$), ou une condition de symétrie ($q = 0$ dans le plan de symétrie). Pour le cas où une température est imposée sur la frontière, on parle de *condition de Dirichlet*.

La figure 2.5 représente un maillage de notre géométrie sur les bords duquel nous avons imposé différentes conditions aux limites.

Le côté a représente la face avant de l'échantillon, face sur laquelle a lieu l'impact de l'impulsion laser. La face b constitue le bord extérieur de la cible prise sous forme cylindrique. La face c est la face arrière de l'échantillon. Comme il s'agit d'une coupe axi-symétrique d'une cible cylindrique, les côtés a et c sont en fait les rayons de ce cylindre. Finalement, le côté d représente l'axe central de la cible. Il s'agit d'un axe de symétrie.

Pour ce qui concerne les trois côtés a , b et c , des conditions en flux de type

¹Conditions de Fourier.

Fourier y ont été imposées. Le coefficient d'échange avec le milieu extérieur, l'air ambiant, noté h vaut $h = 200 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$. Sur ces trois côtés, la condition aux limites est donc de la forme :

$$K \cdot (\overrightarrow{\text{grad}}(T)) \cdot \vec{n} = h(T_{ext} - T) \quad (2.2)$$

Où T_{ext} est la température du milieu extérieur et \vec{n} le vecteur unitaire donnant la normale extérieure au côté considéré.

Au sujet des conditions aux limites sur ces trois côtés, il est important de noter que les échanges en flux apparaissent négligeables devant le refroidissement dû à la diffusion de la chaleur au sein même du matériau. La valeur de h apparaît alors arbitraire et des calculs effectués avec $h = 0 \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ ont donné le même résultat. C'est pourquoi Hohlfeld *et al.* entres autres, imposent une condition en flux nul [HOH 98]. Pour la prise en compte d'un effet sur des temps très longs après l'impulsion, notamment dans l'étude du

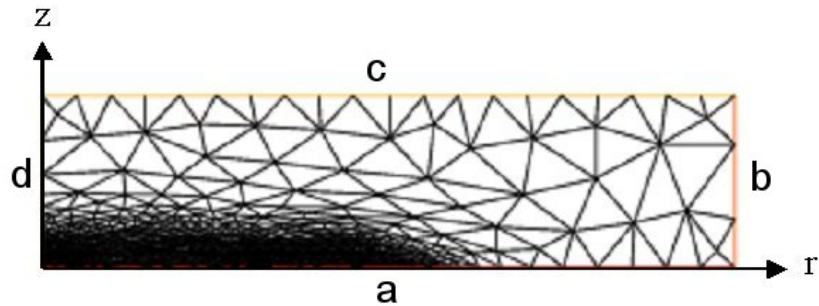


FIG. 2.5 – Notation des différents côtés sur lesquels nous avons imposé des conditions aux limites. a , b et c représentent respectivement la face avant, le côté et la face arrière de notre cible cylindrique. d est un axe de symétrie et représente l'axe au centre du cylindre.

phénomène de multi-impulsions, nous avons choisi d'imposer des conditions non nulles sur ces côtés.

Le côté d , qui représente l'axe de symétrie formé par l'axe du cylindre a par conséquent comme condition aux limites, une condition en flux nul :

$$K \cdot (\overrightarrow{grad}(T)) \cdot \vec{n} = 0 \quad (2.3)$$

Avec les conditions initiales sur les températures des électrons et du réseau d'ions et ces quatre conditions aux limites, le système d'équations aux dérivées partielles peut être résolu.

Dans la suite, l'ensemble des résultats numériques obtenus est présenté. La comparaison des deux régimes d'impulsion femtoseconde et nanoseconde est particulièrement montrée. Nous comparons aussi les différents types de métaux présentés au cours du premier chapitre. L'essentiel des résultats présentés concerne la prise en compte d'une seule impulsion laser excepté à la fin de ce chapitre où nous présentons les effets de plusieurs impulsions. En premier lieu, les résultats de l'évolution des températures en fonction du temps sont présentés.

Ensuite les résultats de l'évolution des températures dans la direction du faisceau sont donnés.

Enfin, afin de donner une estimation de la Zone Affecté Thermiquement (ZAT), les résultats dans la direction radiale du faisceau sont également présentés. Une parenthèse de physique des matériaux est ouverte pour préciser les hypothèses que nous avons utilisées pour définir cette ZAT.

2.2 Résultats numériques

2.2.1 Etude temporelle de l'évolution des températures

Aluminium

Le premier type de métal dont nous présentons les résultats est l'aluminium. La figure 2.6 donne l'évolution calculée en fonction du temps des températures électroniques et du réseau après une impulsion laser de 8 ns sur un échantillon d'aluminium de $10\mu\text{m}$ d'épaisseur. Il s'agit de l'évolution de la température au point $(0,0)$.

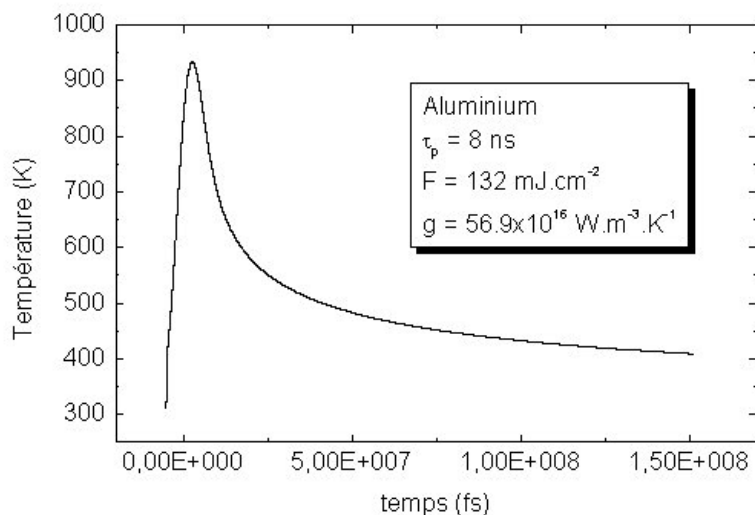


FIG. 2.6 – *Evolution temporelle des températures électronique et du réseau dans le cas du régime nanoseconde pour un échantillon d'aluminium de $10\mu\text{m}$ d'épaisseur.*

Comme pour l'ensemble des résultats numériques, la température maximale atteinte est la température de fusion du métal. Dans ce cas précis de

l'aluminium, cette température est de $933K$. La fluence nécessaire pour atteindre cette température en surface de l'échantillon est de $132mJcm^{-2}$. Sur cette courbe sont représentées les évolutions des températures des électrons et du réseau. Ces deux courbes sont complètement superposées et nous sommes donc bien dans un régime classique de diffusion de la chaleur où la température du réseau suit de façon adiabatique celle des électrons. Le modèle classique de diffusion de la chaleur à une température $T = T_e = T_i$ serait dans ce cas suffisant.

La figure 2.7 donne l'évolution des températures en fonction du temps, toujours pour une cible d'aluminium mais dans ce cas à la suite d'une impulsion de $200fs$.

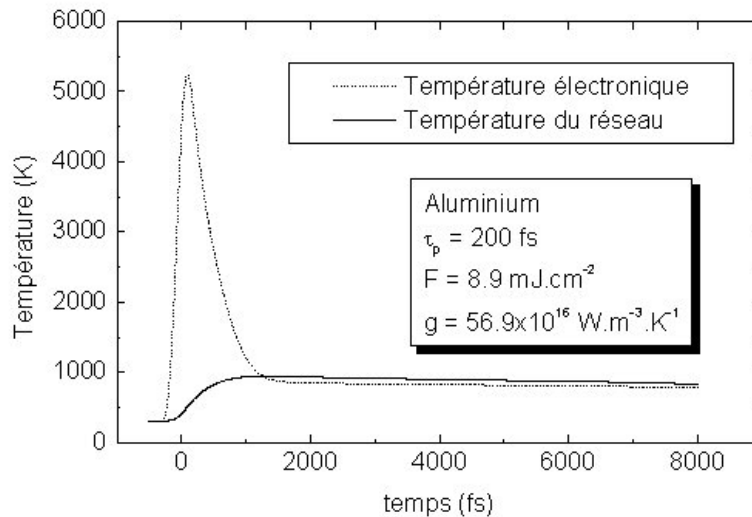


FIG. 2.7 – Evolution temporelle des températures électronique et du réseau dans le cas du régime femtoseconde pour un échantillon d'aluminium de $10\mu m$ d'épaisseur.

Pour ce régime impulsif, la séparation thermodynamique des systèmes électroniques et ioniques apparaît.

On doit noter les valeurs élevées des températures atteintes par les électrons. Immédiatement après l'interaction avec le métal, les électrons, qui absorbent la totalité de l'énergie déposée par le laser, ont une température qui augmente jusqu'à environ $5000K$. Le temps nécessaire pour atteindre cette température est de l'ordre d'une centaine de femtosecondes. Avec de telles températures maximales, si l'on fait référence aux travaux de Hohlfeld [HOH 98], l'hypothèse de thermalisation des électrons sur quelques femtosecondes est parfaitement justifiée.

L'équilibre électron-réseau qui, dans notre cas, a lieu à la température de fusion du matériau, est atteint typiquement en moins de $2ps$. Le temps de couplage τ_{th-eph} est bien à l'échelle de la picoseconde, comme le prévoient les résultats de dynamique électron-réseau énoncés précédemment. Dans ce régime ultra-bref, il n'y a pas de diffusion de la chaleur pendant la durée de l'impulsion.

La fluence nécessaire pour atteindre la fusion à l'équilibre électron-réseau est de $8.9mJcm^{-2}$. Cette fluence est très inférieure à celle du régime nanoseconde : le rapport $F_{absnano}/F_{absfemto}$ est proche de 15.

Ce premier cas de figure concernant l'aluminium (métal simple) apporte diverses informations et matérialise la séparation thermodynamique entre les électrons et le réseau d'ions pour le régime femtoseconde.

Il est important de remarquer la différence entre les fluences nécessaires pour atteindre la fusion en surface pour les deux régimes. Dans le cas femtoseconde, la fluence est de $8.9mJcm^{-2}$ alors qu'elle est de $132mJcm^{-2}$ pour le

cas nanoseconde. Ceci s'explique par le fait que dans le régime ultra-bref, le chauffage du réseau a lieu très rapidement et la chaleur n'a pas le temps de diffuser dans le matériau. Pour ce régime, l'énergie déposée reste en surface de l'échantillon et la densité d'énergie en surface est très élevée; les pertes dans le volume de l'échantillon sont extrêmement limitées et la quasi totalité de l'énergie déposée est utilisée pour chauffer le matériau.

L'intérêt des impulsions ultra-brèves est de pouvoir obtenir des densités de puissance extrêmement élevées. Dans ce premier exemple, pour le régime nanoseconde, la densité de puissance associée à l'impulsion est de :

$$\frac{F_{abs}}{\tau_p} = 1.65 \times 10^7 W.cm^{-2} \quad (2.4)$$

et, pour l'impulsion femtoseconde :

$$\frac{F_{abs}}{\tau_p} = 4.45 \times 10^{10} W.cm^{-2} \quad (2.5)$$

A densité d'énergie plus faible, l'impulsion femtoseconde génère une densité de puissance supérieure de trois ordres de grandeur.

Cuivre

La figure 2.8 donne l'évolution des températures en fonction du temps pour une impulsion de $8ns$ et une cible de cuivre de $10\mu m$. La fluence utilisée pour atteindre la fusion en surface est de $380mJcm^{-2}$. Pour le régime femtoseconde, l'évolution des températures est représentée sur la figure 2.9; la fluence est de $101mJcm^{-2}$.

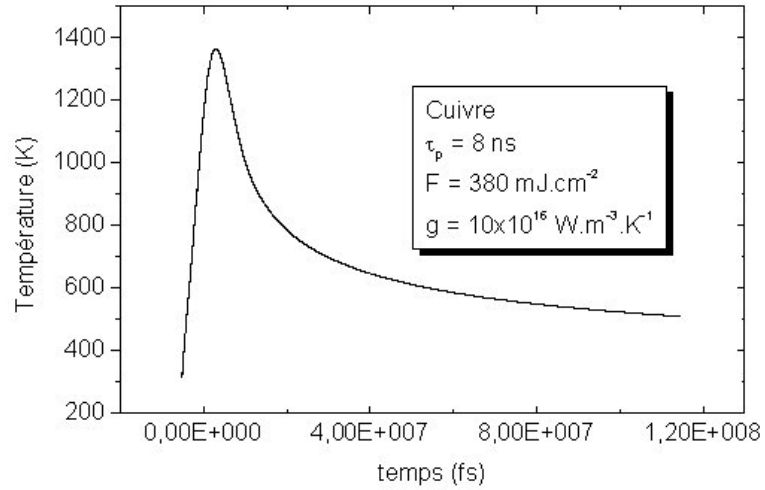


FIG. 2.8 – Evolution temporelle des températures électronique et du réseau pour un échantillon de cuivre de $10\mu\text{m}$ d'épaisseur en régime nanoseconde.

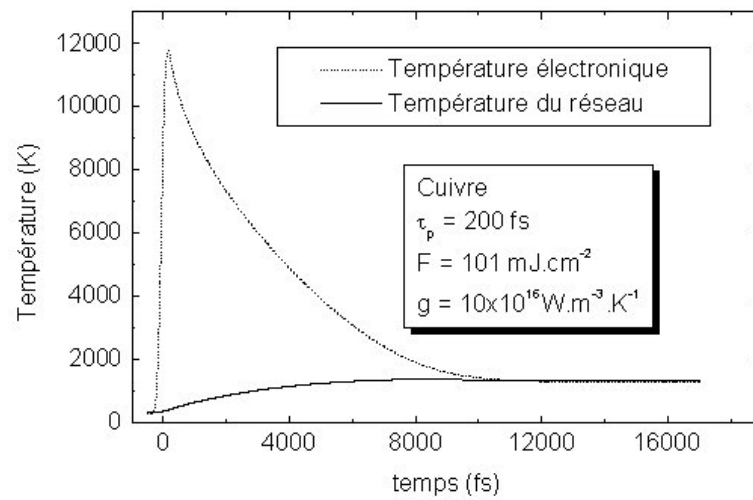


FIG. 2.9 – Evolution temporelle des températures électronique et du réseau pour un échantillon de cuivre de $10\mu\text{m}$ d'épaisseur en régime femtoseconde.

Nickel

Les figures 2.10 et 2.11 représentent respectivement les évolutions des températures pour les régimes nanoseconde et femtoseconde dans le cas d'une cible de nickel de $10\mu\text{m}$ d'épaisseur. Les fluences utilisées pour chacun des régimes sont respectivement de 281mJcm^{-2} et de 38.7mJcm^{-2} .

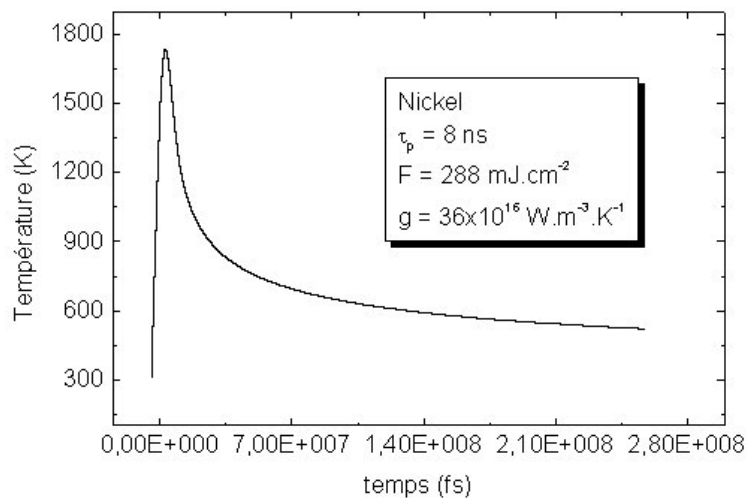


FIG. 2.10 – *Evolution temporelle des températures électronique et du réseau pour un échantillon de nickel de $10\mu\text{m}$ d'épaisseur en régime nanoseconde.*

A la suite de ces premiers résultats, on peut souligner les points suivants :

◊ Le régime nanoseconde peut être représenté par un modèle classique de diffusion de la chaleur à une température avec comme grandeurs physiques principalement responsables de la réponse de la matière, les grandeurs *classiques* que sont la conductivité thermique K_{e0} et la chaleur spécifique électronique C'_e . Comme le rappellent Wellershoff *et al.* [WEL 99], dans ce régime d'impulsion, la diffusion de la chaleur a lieu pendant la durée de l'impulsion. La densité d'énergie proche de la surface s'en trouve diminuée et la distribution de l'énergie s'élargit dans le matériau. Matthias *et al.* [MAT 94] ont étudié la diffusion en régime nanoseconde et ont montré que celle-ci pouvait être tronquée en utilisant des films d'épaisseur inférieure à la longueur de diffu-

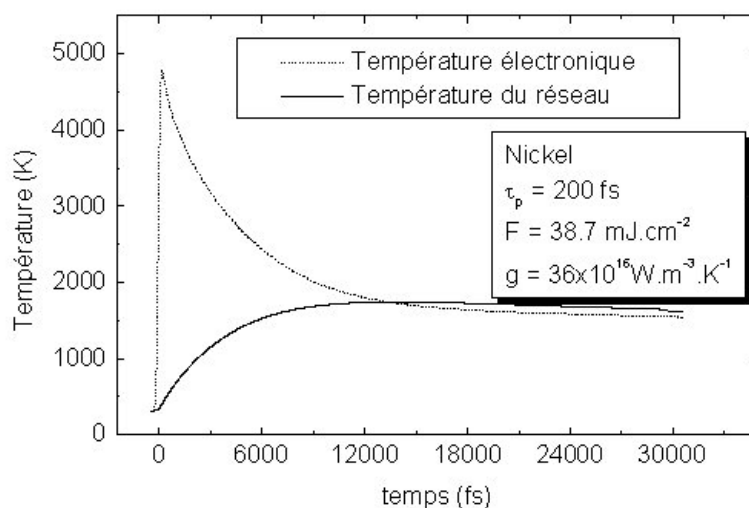


FIG. 2.11 – *Evolution temporelle des températures électronique et du réseau pour un échantillon de nickel de 10 μ m d'épaisseur en régime femtoseconde.*

sion thermique.

Comme nous l'avons dit pour le cas de l'aluminium, les temps mis en jeu dans chacun de ces régimes d'impulsion entraînent des valeurs de fluence et donc de densité de puissance nécessaires pour atteindre la fusion différentes de plusieurs ordres de grandeur. La figure 2.12 résume ces différences pour chacun des trois métaux étudiés.

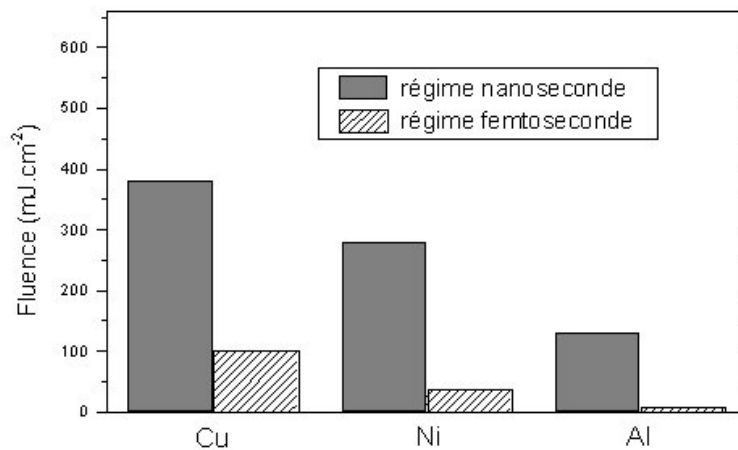


FIG. 2.12 – Schéma donnant pour chaque régime d'impulsion et pour chaque type de métal la fluence nécessaire pour atteindre T_f en surface.

◇ Pour le régime femtoseconde qui nous intéresse plus particulièrement, les comportements de la matière à la suite de l'impulsion sont directement liés à la valeur de la constante de couplage électron-phonon g .

• La figure 2.13 représente l'influence de g sur les densités de puissance nécessaires pour atteindre la température de fusion en surface. L'aluminium, qui possède la plus forte constante de couplage, nécessite la plus faible den-

sité de puissance ; cas directement opposé à celui du cuivre. Cette dépendance n'est pas complètement linéaire car les grandeurs thermiques *classiques* continuent à jouer un rôle dans la réponse du matériau. Cela traduit très bien le fait que lorsque le couplage électron-phonon est fort, l'énergie déposée initialement dans le gaz d'électrons est très rapidement utilisée pour chauffer le matériau. La diffusion au sein du gaz d'électrons est limitée et le transfert d'énergie vers le réseau d'ions se fait dans les premiers instants suivant l'impact laser et à proximité de la surface. La localisation de l'énergie en surface est d'autant plus importante que le couplage entre les deux sous-systèmes est fort.

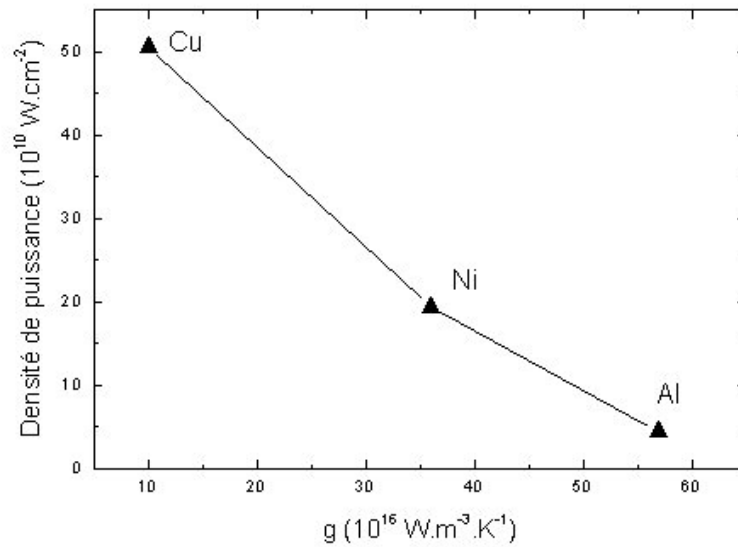


FIG. 2.13 – Evolution de la densité de puissance en régime femtoseconde en fonction de la valeur de la constante de couplage électron-phonon g .

- Si l'on étudie l'influence de g sur le temps nécessaire pour atteindre

T_f en régime femtoseconde, on remarque que le cas du nickel ne suit pas la tendance de l'aluminium et du cuivre. Ceci va dans le sens de la remarque faite précédemment sur le rôle des grandeurs thermiques *classiques*. En effet, la chaleur spécifique C'_e du nickel est largement supérieure à celle des deux autres métaux étudiés et sa conductivité thermique beaucoup plus faible. La faible valeur de la conductivité thermique ne suffit pas à compenser l'importance de la chaleur spécifique. Il s'en suit un temps de chauffage plus long que pour le cuivre. La figure 2.14 donne cette évolution.

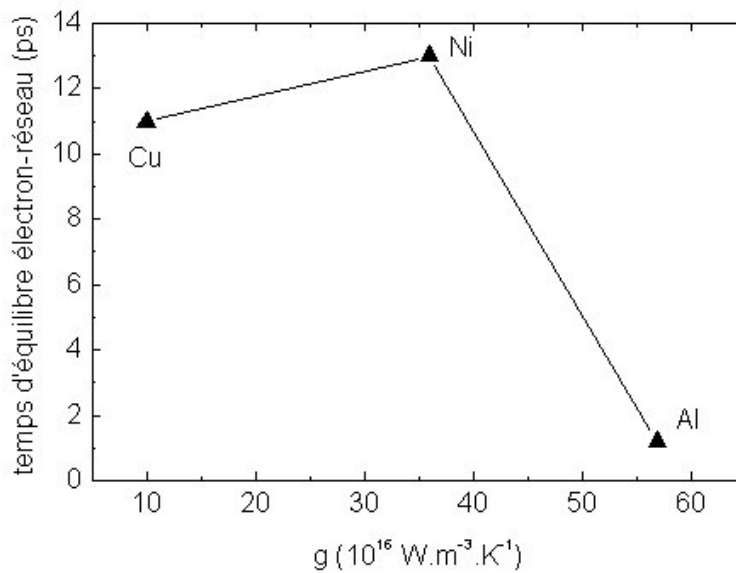


FIG. 2.14 – Influence de g sur le temps nécessaire pour atteindre l'équilibre électron-réseau. On remarque la valeur notablement différente pour le Ni.

Le tableau 2.1 présente un récapitulatif des grandeurs physiques décrivant les trois métaux étudiés. Ces valeurs ont été introduites dans le premier chapitre et permettent de comprendre le comportement de la matière pour

chacun de ces métaux.

	Cu	Ni	Al
$g(10^{16}Wm^{-3}K^{-1})$	10	36	56.9
$C'_e(Jm^{-3}K^{-2})$	97	1065	135
$K_{e0}(Wm^{-1}K^{-1})$	401	91	238
$C_l(10^{16}Jm^{-3}K^{-1})$	3.46	4.1	2.43
$\lambda_0(nm)$	13.5	14.4	16.9
$\lambda_{bal}(nm)$	100	–	–
$T_f(K)$	1358	1728	933

TAB. 2.1 – *Tableau récapitulatif des grandeurs physiques permettant de décrire les trois métaux de notre étude.*

- Le résultat suivant présente l'étude du temps nécessaire au réseau d'électrons pour qu'il atteigne sa température maximale $T_{e,max}$, toujours en fonction de g . (Figure 2.15).

La force du couplage électron-phonon détermine la dynamique de chauffage du réseau d'ions. Elle influe par conséquent directement sur le temps de chauffage des électrons. Plus le couplage est fort et plus le transfert d'énergie du gaz d'électrons au réseau a lieu rapidement, ce qui entraîne une baisse de la température électronique et rapproche le maximum vers les temps courts. Comme pour le résultat de la figure 2.14, on remarque la valeur différente pour le Ni. Naturellement, le chauffage du gaz d'électrons dépend de g , mais il dépend aussi de la chaleur spécifique. La valeur élevée de C'_e pour le nickel entraîne des temps de chauffage plus grands.

2.2.2 Evolution des températures dans la direction du faisceau

Bien que ce ne soit pas l'objectif principal de notre travail, nous présentons dans cette section l'étude de l'évolution des températures dans la direction de l'axe du faisceau laser ; direction choisie suivant z .

Chaque figure donne l'évolution de la température du réseau d'ions à différents temps après l'impulsion et pour $r = 0$. Pour chaque résultat, le premier temps donné est le temps où la température des ions est à son maximum, c'est-à-dire à la température de fusion du métal. On présente les résultats pour des cibles de 10 microns d'épaisseur.

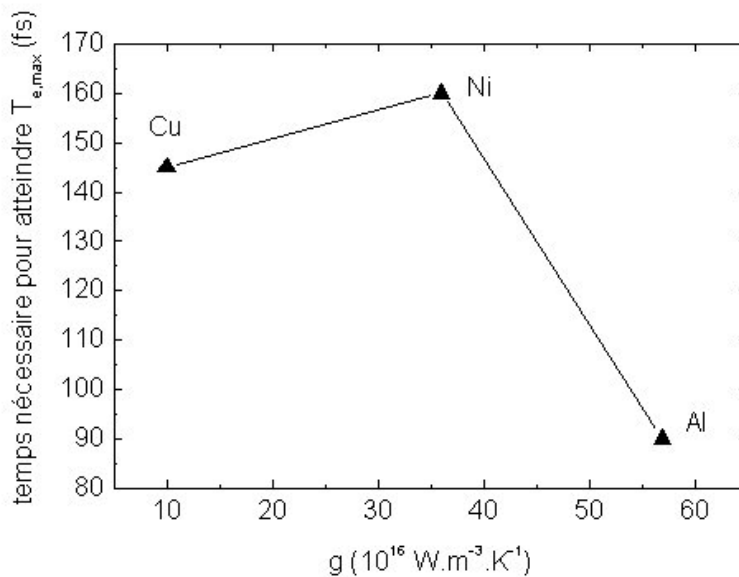


FIG. 2.15 – Influence de g sur le temps nécessaire pour atteindre $T_{e,max}$.

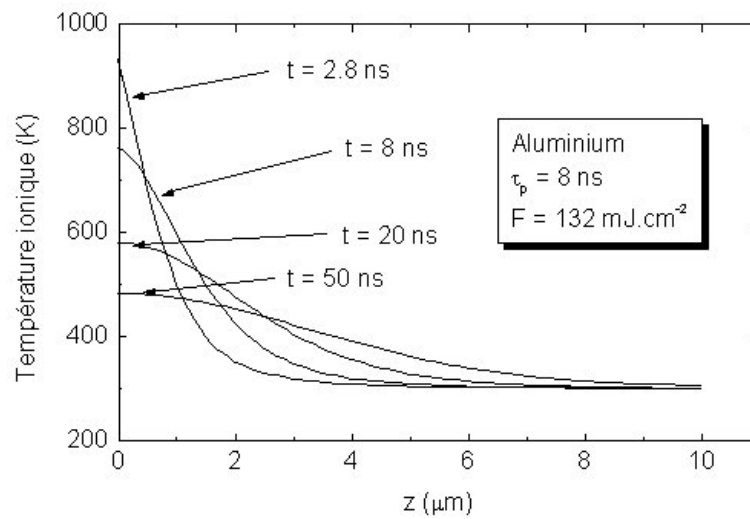


FIG. 2.16 – Evolution de la température du réseau en fonction de z pour une cible d'aluminium de 10microns d'épaisseur. $\tau_p = 8\text{ns}$. L'évolution est calculée à différents temps après l'impulsion laser.

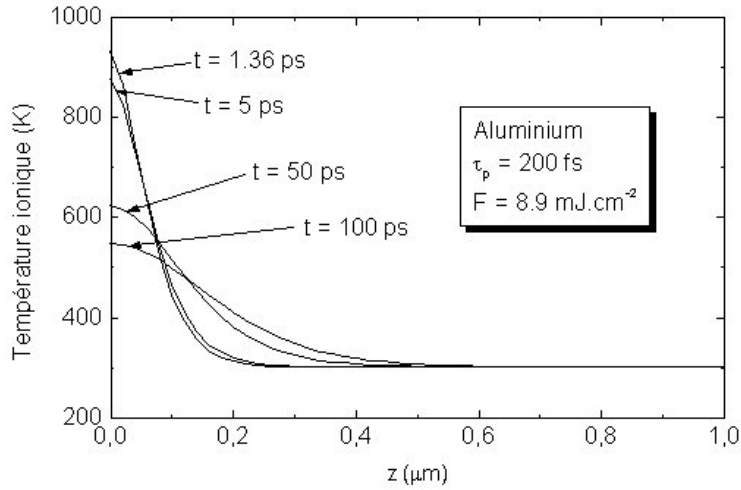


FIG. 2.17 – Evolution de la température du réseau en fonction de z pour une cible d'aluminium de 10microns d'épaisseur. $\tau_p = 200 fs$.

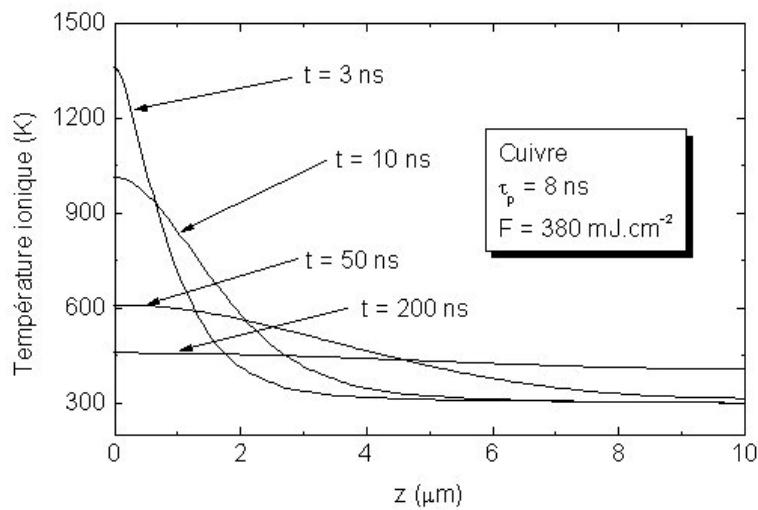


FIG. 2.18 – Evolution de la température ionique en fonction de z pour une cible de cuivre de 10microns d'épaisseur. $\tau_p = 8 ns$.

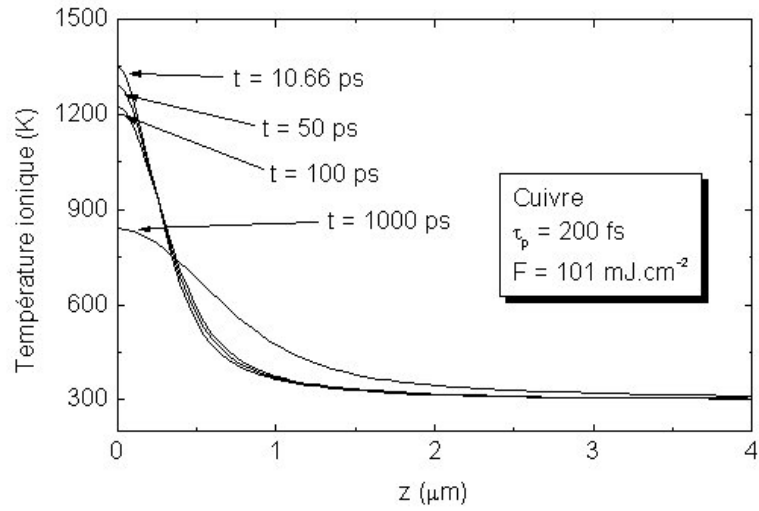


FIG. 2.19 – Evolution de la température ionique en fonction de z pour une cible de cuivre de 10microns d'épaisseur. $\tau_p = 200 fs$.

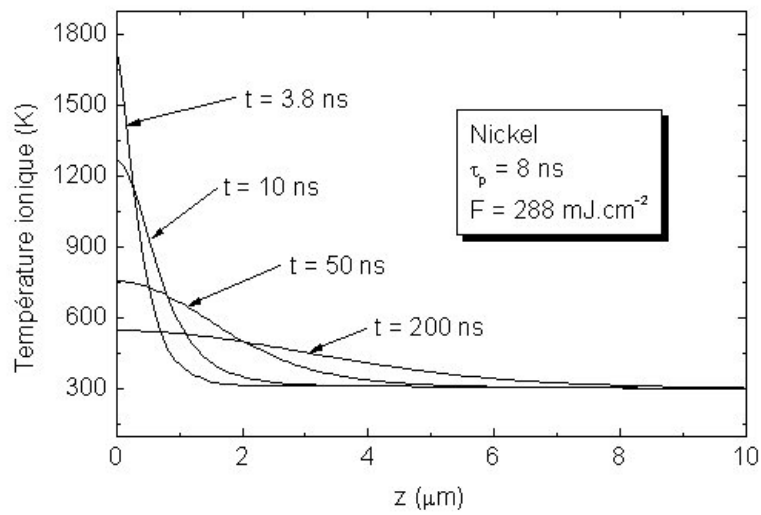


FIG. 2.20 – Evolution de la température ionique en fonction de z pour une cible de nickel de 10microns d'épaisseur. $\tau_p = 8 ns$.

Typiquement, la zone sur laquelle a lieu la diffusion est de quelques microns pour les impulsions nanosecondes et de l'ordre de la centaine de nanomètres pour le régime femtoseconde.

Pour le régime femtoseconde, on remarque que l'étendue de la diffusion est de l'ordre de 200 à 300 nm dans les cas de l'aluminium et du nickel alors qu'elle se situe autour du μm pour la cible de cuivre. Ce résultat montre l'influence de la valeur de g sur les résultats de micro-usinage des métaux. En effet, la constante de couplage est beaucoup plus forte pour l'aluminium et le nickel comparativement au cuivre. On a alors une concentration en surface de l'énergie déposée sur la cible. La figure 2.22 compare les diffusions pour les trois métaux au temps où la température maximale est atteinte.

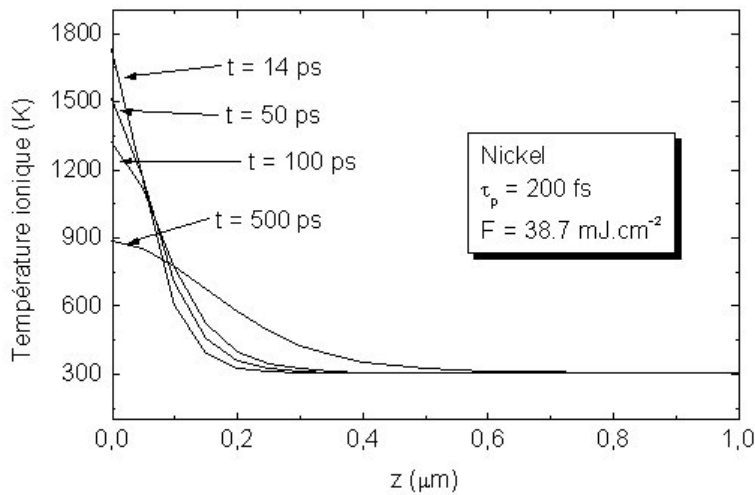


FIG. 2.21 – Evolution de la température ionique en fonction de z pour une cible de cuivre de 10microns d'épaisseur. $\tau_p = 200\text{fs}$.

On remarque que l'aluminium et le nickel présentent bien une diffusion plus faible que le cuivre. La diffusion pour le nickel est même inférieure à celle de l'aluminium ; cela est dû à la faible valeur de sa conductivité thermique.

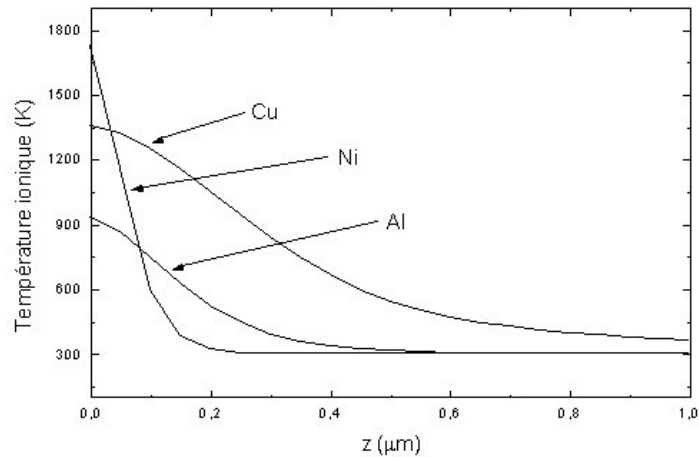


FIG. 2.22 – Evolution de la température du réseau en fonction de la profondeur du métal dans le cas du régime femtoseconde. Le temps du calcul est pris pour $T = T_f$.

Ces résultats donnent les évolutions des températures du réseau en fonction de la profondeur. Wellershoff *et al.* [WEL 99] ont publié le même genre de résultats sur des cibles d'or. Ils associent les courbes de diffusion de la température ionique à l'influence de la diffusion des électrons chauds et définissent une longueur de diffusion thermique des électrons chauds. Ils retrouvent alors le temps caractéristique de séparation entre les régimes *longs* et *ultra-brefs* initialement introduit par Corkum *et al.* [COR 88]. Les résultats que nous venons de présenter se rapprochent des travaux de ces auteurs et sont un point de vue plutôt théorique des effets de la chaleur sur la matière.

De notre point de vue, la notion de longueur de diffusion thermique ne prend un sens que si elle est couplée à des arguments de physique des matériaux. On peut alors considérer l'étendue de la zone affectée thermiquement. C'est cette approche que nous développons dans la suite en étudiant les évolutions radiales des températures en fonction du temps.

2.2.3 Distribution radiale des températures : modélisation de la *ZAT*

Nous nous sommes particulièrement intéressés à la maîtrise des effets thermiques en bordure de la découpe laser. Aussi, cette section présente le résultat central de nos calculs : la distribution des températures ioniques dans la direction perpendiculaire à la propagation du faisceau laser.

En ce qui concerne les résultats numériques, une première approche donne l'évolution des températures ioniques dans le cas de cibles de $10\mu m$ de profondeur ; dans le but de s'affranchir des effets d'épaisseur.

Une deuxième partie est consacrée à la même étude appliquée à des cibles d'aluminium de 500 nm d'épaisseur. En effet, cette dernière étude a pour but d'être confrontée aux premiers résultats expérimentaux obtenus sur des lames minces de 500nm d'épaisseur observées par microscopie électronique à transmission (*Cf.* dernier chapitre).

Avant de quantifier la *ZAT*, il est nécessaire de la définir de façon précise. La définition choisie est basée sur des propriétés de physique des matériaux. La section suivante propose un rappel de quelques généralités de physique des matériaux.

Rappels de physique des matériaux

Les métaux sont des solides de structure cristalline. D'un point de vue macroscopique, ils ne consistent pas en général en un monocristal mais plutôt en de nombreux grains formant un ensemble polycristallin. Chaque grain diffère d'un autre par son orientation, parfois même par sa structure cristalline ou sa composition. Si seule l'orientation différencie les grains, on parle de système homogène, sinon, on parle de système hétérogène formé de sous-systèmes homogènes que sont les phases.

Les joints de grains qui relient les grains différemment orientés possèdent une énergie interfaciale positive. Leur existence ne correspond donc pas à un état d'énergie minimale mais dépend de *l'histoire* du métal [HAA 96] [VER 75]. Dans un état d'équilibre thermodynamique absolu, un métal ne possède donc aucun joint de grain. C'est un monocristal parfait dont l'étude concerne plutôt la physique du solide. La physique des matériaux, quant à elle, prend en compte les défauts du solide.

On caractérise une *microstructure* par le nombre, la composition, la répartition et la morphologie des différentes phases et défauts cristallins du matériau [DRI 00] [BIS 00]. Ces défauts sont en fait des discontinuités à l'intérieur du matériau. Ils peuvent être de dimension nulle (lacunes), de dimension 1 (dislocations), de dimension 2 (interfaces) ou encore de dimension 3 (particules). D'un point de vue thermodynamique, tous ces défauts sont hors équilibre.

On définit alors une microstructure comme un arrangement à trois dimensions de défauts hors équilibre thermodynamique.

Le système hors équilibre thermodynamique généré par la présence de ces défauts tend à évoluer vers une configuration énergétique plus basse. Le passage d'un état instable à un état d'énergie plus stable nécessite des processus thermiquement activés. Dans notre cas, les instabilités prises en compte sont, d'une part, les instabilités d'origine élastique qui proviennent de l'énergie emmagasinée dans le matériau à la suite d'une déformation plastique ; d'autre part, les instabilités d'origine interfaciale qui sont la conséquence de l'énergie positive due à la tension superficielle séparant deux grains distincts par exemple.

La logique de la mise en évidence d'effets thermiques localisés dans le voisinage de l'impact laser est donc la suivante. Nous avons défini comme Zone Thermiquement Affectée dans la direction radiale du faisceau, la région externe au faisceau de type *top-hat* ayant subi des températures supérieures à la température d'activation thermique notée T_a . La figure 2.23 donne une représentation schématique de la définition de la ZAT radiale que nous avons utilisée. Au-delà de la température T_a , une activation thermique des microstructures en vue d'une diminution de l'énergie interne a lieu. Les deux phénomènes que nous avons pris en compte sont la restauration et la recristallisation du matériau. Les valeurs communément admises pour T_a varient entre $\sim 0.3 - 0.5T_f$ pour le début de la restauration [DRI 00] et dépendent de la préparation des matériaux. Dans notre cas, nous avons choisi la valeur moyenne de $T_a = 0.4 \times T_f$. Ce choix intervient sur les mesures de l'étendue de la ZAT donnée par les calculs et rappelle le caractère relatif de la mesure d'une zone thermiquement affectée. Toutefois, le choix entre 0.3 et $0.5T_f$ ne

change pas l'ordre de grandeur des résultats.

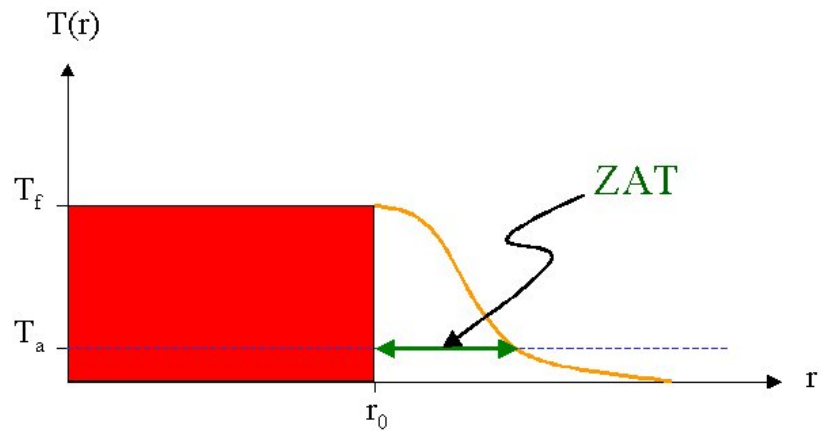


FIG. 2.23 – Représentation schématique de la Zone Thermiquement Affectée en bordure du faisceau carré.

L'influence des processus de restauration et de recristallisation sur le matériau fournit une signature de l'histoire thermique subie par la matière à la suite de l'impulsion laser. Les résultats numériques obtenus avec ces hypothèses sont présentés dans la section suivante.

Présentation des résultats

La présentation est du même type que pour la diffusion dans l'axe du faisceau. On donne les résultats pour chaque métal pour les deux régimes d'impulsion puis nous discutons l'ensemble de ces résultats. Chaque cible modélisée a une épaisseur de $10 \mu m$ et les durées d'impulsion nanoseconde et femtoseconde sont respectivement de $8 ns$ et de $200 fs$; durées représentant la largeur totale de la gaussienne temporelle à mi-hauteur. Les distributions de température sont données pour différents temps après l'impulsion laser.

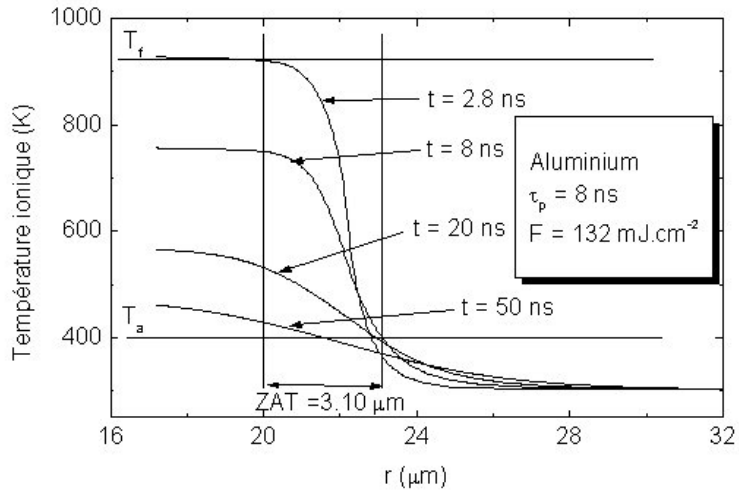


FIG. 2.24 – Représentation schématique de la Zone Thermiquement Affectée en bordure du faisceau carré. Aluminium, régime nanoseconde.

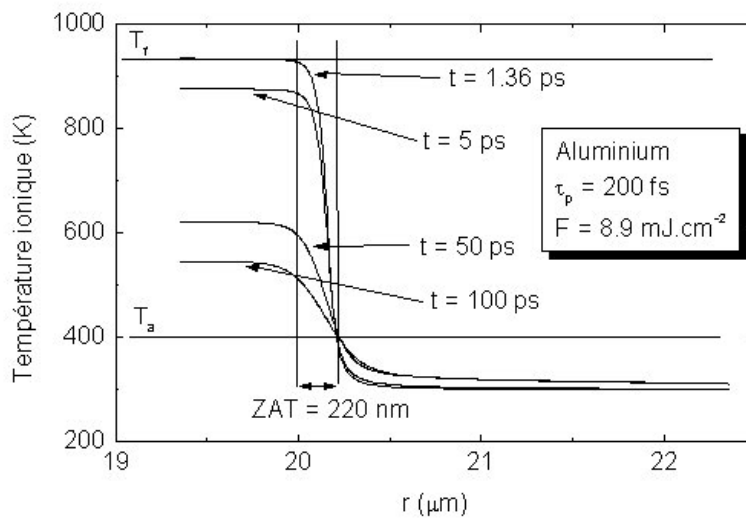


FIG. 2.25 – Représentation schématique de la Zone Thermiquement Affectée en bordure du faisceau carré. Aluminium régime femtoseconde.

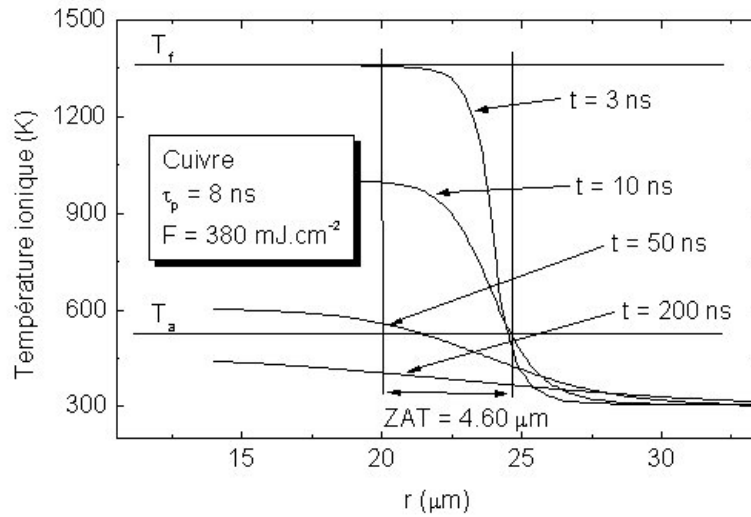


FIG. 2.26 – Représentation schématique de la Zone Thermiquement Affectée en bordure du faisceau carré. Cuivre, régime nanoseconde.

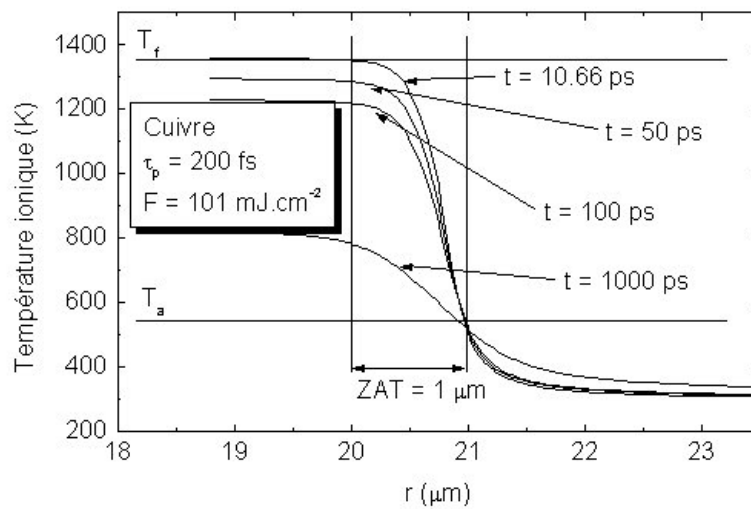


FIG. 2.27 – Représentation schématique de la Zone Thermiquement Affectée en bordure du faisceau carré. Cuivre, régime femtoseconde.

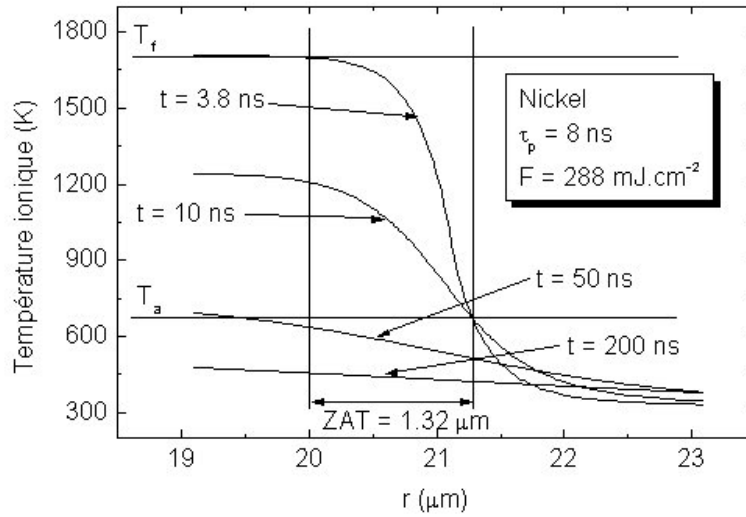


FIG. 2.28 – Représentation schématique de la Zone Thermiquement Affectée en bordure du faisceau carré. Nickel, régime nanoseconde.

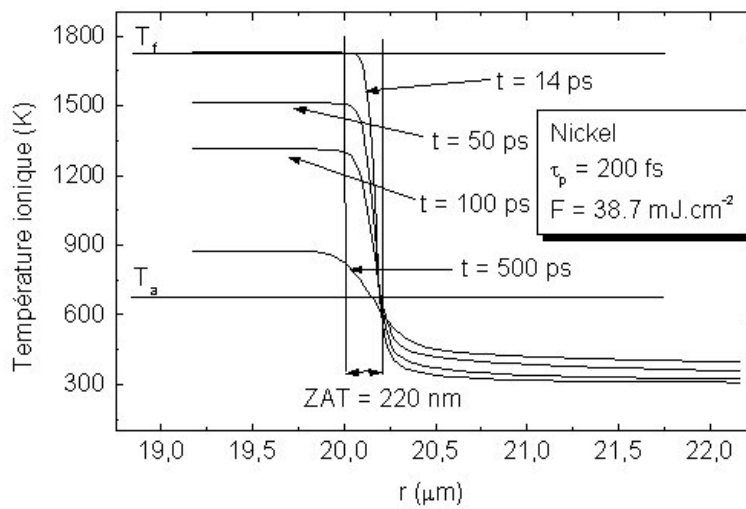


FIG. 2.29 – Représentation schématique de la Zone Thermiquement Affectée en bordure du faisceau carré. Nickel, régime femtoseconde.

Discussion

Les raisonnements de type général tenus dans le cas de la discussion de la diffusion suivant z sont toujours valables. Ainsi, on remarque la différence entre les différents types de métaux et la différence principale entre les deux régimes d'impulsion. Le graphique 2.30 donne les dimensions de la ZAT pour le régime nanoseconde en fonction de la conductivité thermique. Pour ce régime d'impulsion, elle s'étend de $1.32\mu\text{m}$ pour le nickel à $4.60\mu\text{m}$ pour le cuivre. L'aluminium présente lui une valeur de $3.10\mu\text{m}$.

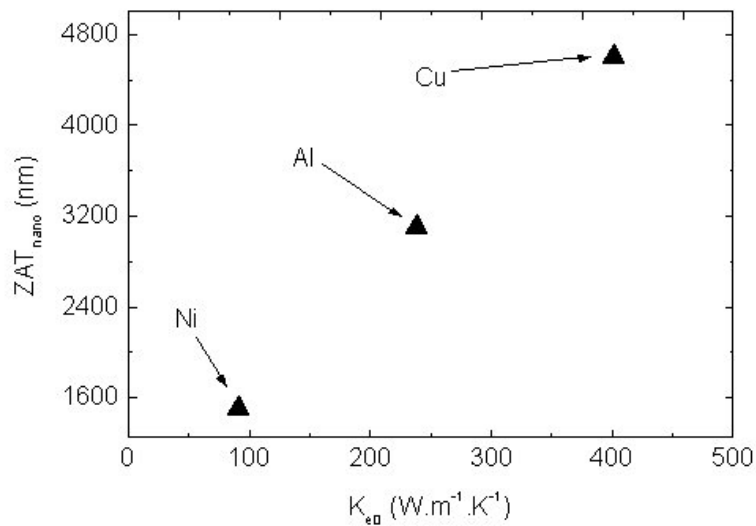


FIG. 2.30 – Valeurs des ZAT pour le régime nanoseconde pour les trois métaux en fonction de K_{e0} .

La faible valeur de la ZAT pour le nickel, s'explique une fois de plus par sa faible valeur de conductivité thermique. Le cuivre et l'aluminium possédant une conductivité thermique supérieure à celle du nickel. Nous sommes dans un régime classique de diffusion de la chaleur.

La figure 2.31 présente les résultats de la ZAT pour le régime femtoseconde en fonction de g . La constante de couplage électron-phonon est principalement responsable pour ce régime. Ainsi, à la cible d'aluminium est associée une ZAT de 220nm de même que pour le nickel, alors que pour le cuivre elle est de $1\mu\text{m}$. Là encore la valeur de la conductivité thermique du nickel entraîne une faible diffusion de la chaleur alors que celle du cuivre, associée à la faible valeur de la constante de couplage, est beaucoup plus importante.

Si l'on raisonne en terme de type de métal, le micro-usinage des métaux simples, qui possèdent un fort couplage électron-phonon, est favorisé comparativement aux métaux nobles. L'aluminium, dans notre cas présent, est donc un bon candidat quant à l'usinage femtoseconde.

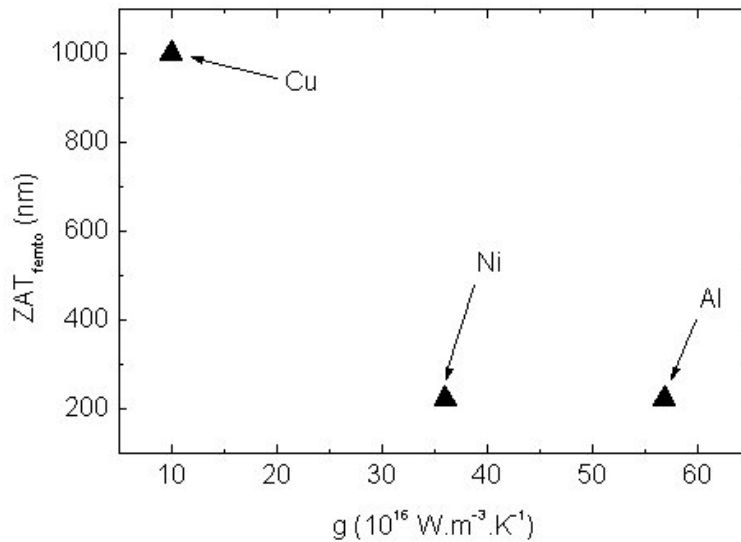


FIG. 2.31 – Valeurs des ZAT pour le régime femtoseconde pour les trois métaux en fonction de g .

Le tableau 2.2 résume les valeurs de ZAT.

	Cu	Ni	Al
$ZAT_{nano}(\mu m)$	4.60	1.32	3.10
$ZAT_{femto}(\mu m)$	1.00	0.22	0.22

TAB. 2.2 – Tableau récapitulatif des ZAT pour chaque métal et chaque régime d'impulsion.

Pour comparer les deux régimes, la figure 2.32 donne le rapport de la ZAT en régime nanoseconde à la ZAT en régime femtoseconde.

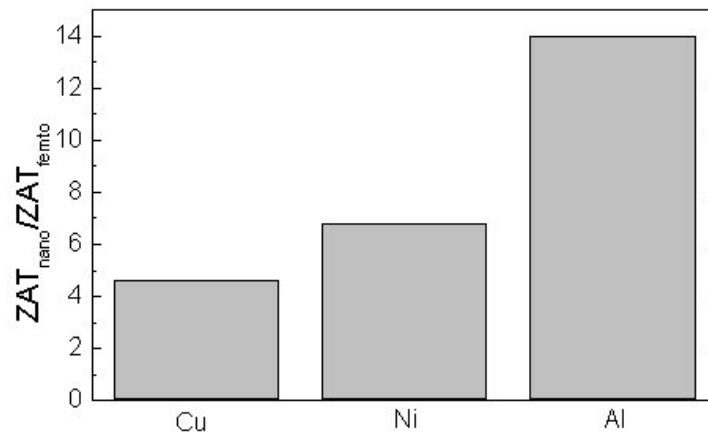


FIG. 2.32 – Rapport des ZAT entre les régimes nanoseconde et femtoseconde.

Si l'on compare ce résultat du rapport des zones affectées thermiquement pour les deux régimes d'impulsion avec le rapport des fluences nécessaires pour atteindre la fusion en surface (figure 2.33), on remarque que les deux

résultats sont très proches. La fluence reçue par la cible est directement responsable de l'étendue de la ZAT radiale. Ce résultat confirme de plus l'intérêt particulier du micro-usinage des métaux simples. En effet, dans cette étude, l'aluminium apparaît comme le métal donnant les meilleurs résultats de micro-usinage, comparativement au nickel et au cuivre.

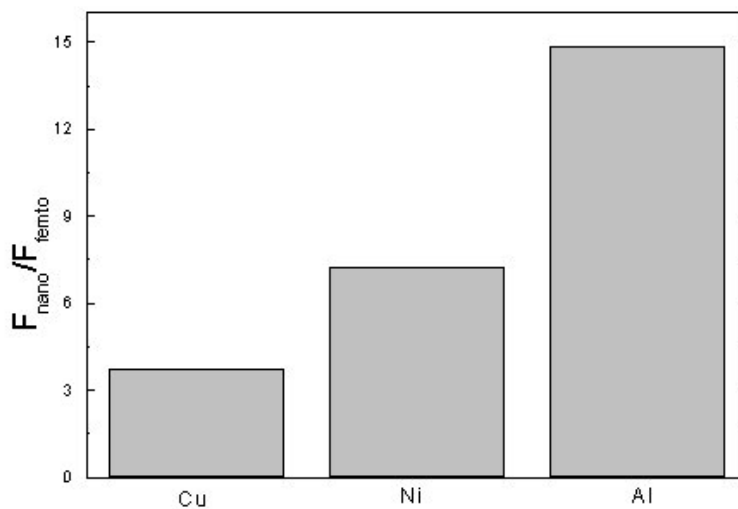


FIG. 2.33 – *Rapport des fluences nanoseconde et femtoseconde nécessaires pour atteindre la fusion en surface de l'échantillon.*

Pour l'ensemble des résultats présentés jusqu'ici, nous avons modélisé une cible métallique de $10\mu\text{m}$ d'épaisseur afin de nous affranchir des effets de volume.

Dans la section suivante, nous présentons les mêmes types de résultats pour une cible d'aluminium de 500nm d'épaisseur. En effet, comme nous le verrons au cours du troisième chapitre, une partie de notre travail expérimental a consisté à mettre en place la mesure de l'étendue de la ZAT radiale sur des

cibles d'aluminium observées par microscopie électronique en transmission (MET). Cette technique nécessite des cibles d'une épaisseur de quelques centaines de nanomètres communément appelées *lames minces*. Pour être complets et tester la validité du modèle, nous avons donc effectué une modélisation d'une lame mince d'aluminium représentant l'échantillon réellement analysé au MET.

2.2.4 ZAT radiale d'une lame mince d'aluminium de 500 nm d'épaisseur.

Présentation des résultats

Les figures suivantes donnent les évolutions des températures du réseau sur le même schéma que les sections précédentes. L'ensemble des résultats concerne une cible d'aluminium de 500nm d'épaisseur. Ainsi les figures 2.34, 2.35 et 2.36 représentent respectivement l'évolution de la température du réseau d'ions en fonction du temps, de la profondeur de la cible et de la distance radiale en bordure du faisceau dans le cas d'une impulsion nanoseconde. Sur le même schéma les figures 2.37, 2.38 et 2.39 donnent les mêmes résultats pour le cas du régime femtoseconde.

Discussion

La première remarque concerne les fluences mises en jeu. Pour le régime nanoseconde, la fluence nécessaire pour atteindre la fusion en surface de l'échantillon est de $63.9mJ.cm^{-2}$, alors qu'elle était de $132mJ.cm^{-2}$ pour le cas de la cible épaisse de $10\mu m$. Pour le régime femtoseconde, la fluence

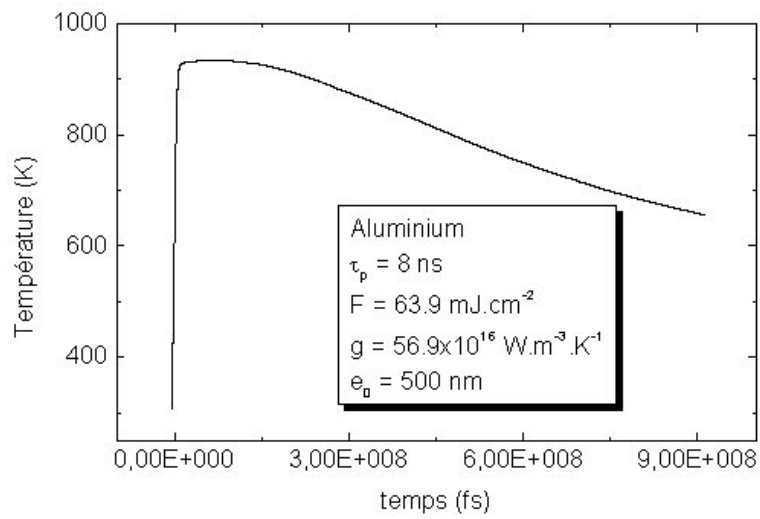


FIG. 2.34 – Evolution des températures ionique et électronique en fonction du temps pour une cible d'aluminium de 500nm d'épaisseur et une impulsion de 8ns (les deux courbes sont confondues).

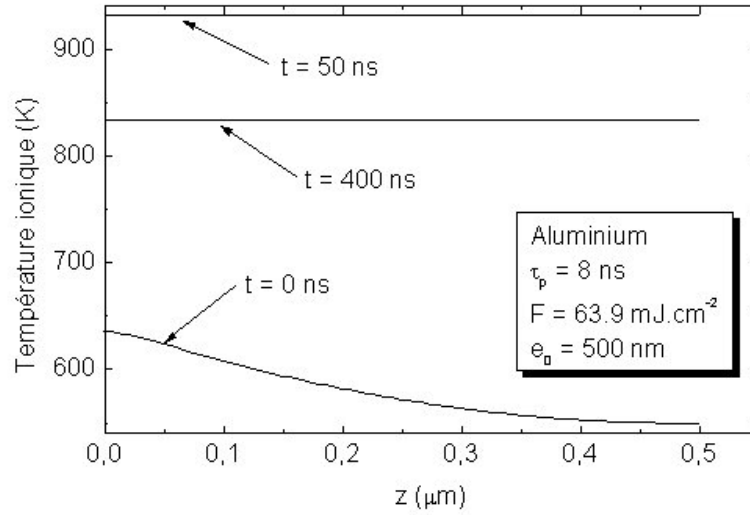


FIG. 2.35 – Evolution de la température du réseau en fonction de la profondeur de la cible d'aluminium. Durée de l'impulsion de 8ns.

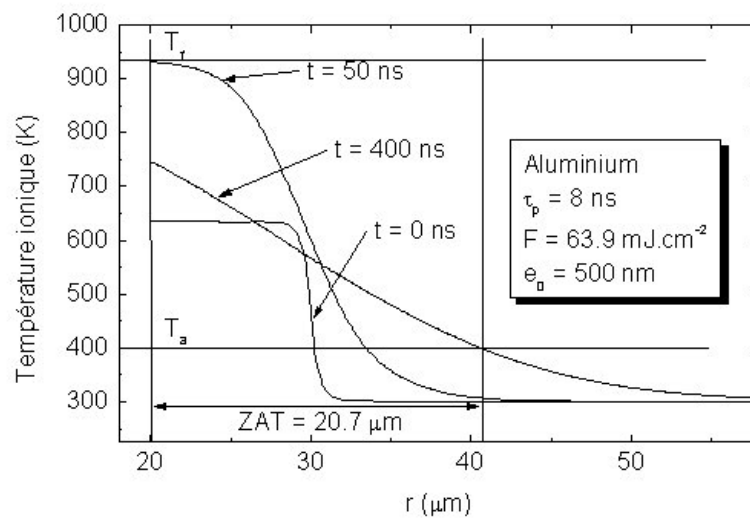


FIG. 2.36 – Evolution de la température du réseau en fonction de r . Durée de l'impulsion de 8ns.

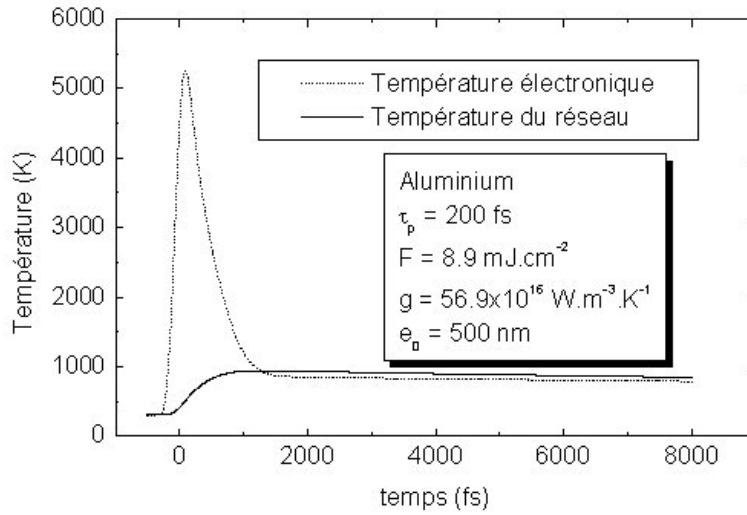


FIG. 2.37 – Evolution des températures en fonction du temps pour une cible d'aluminium de 500nm d'épaisseur et une impulsion de 200fs.

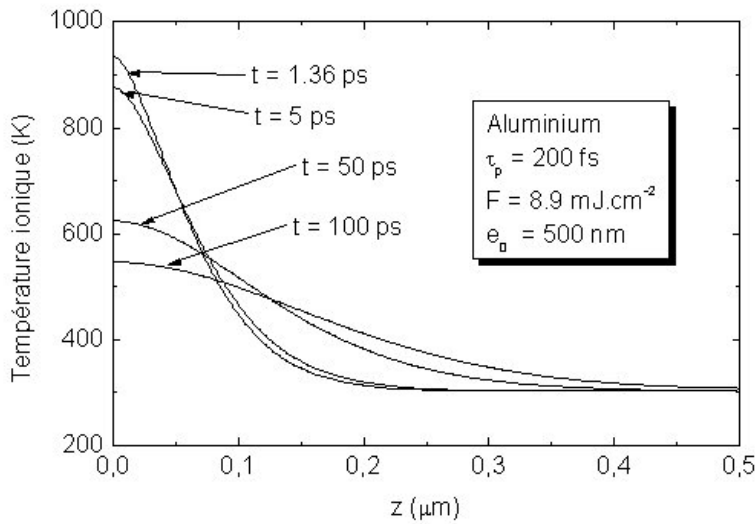


FIG. 2.38 – Evolution de la température du réseau en fonction de la profondeur de la cible d'aluminium. Durée de l'impulsion de 200fs.

dans le cas de la lame mince est la même que pour la cible épaisse. De façon générale, on remarque que les résultats obtenus pour le régime femtoseconde dans le cas de la lame mince, sont identiques à ceux présentés pour la cible épaisse de $10\mu m$.

La dépendance de la fluence seuil en fonction de l'épaisseur de la cible a été largement étudiée. Matthias *et al.* [MAT 94] ont mesuré des seuils d'ablation en fonction de l'épaisseur de la cible dans le cas du régime nanoseconde. Les cibles qu'ils ont utilisées étaient des cibles de nickel et d'or. Les impulsions délivrées dans leur cas étaient de $14ns$ pour une longueur d'onde de $248nm$. Ils ont mis en évidence la dépendance linéaire de la fluence seuil en fonction de l'épaisseur pour des cibles d'épaisseur inférieure à la longueur de diffusion

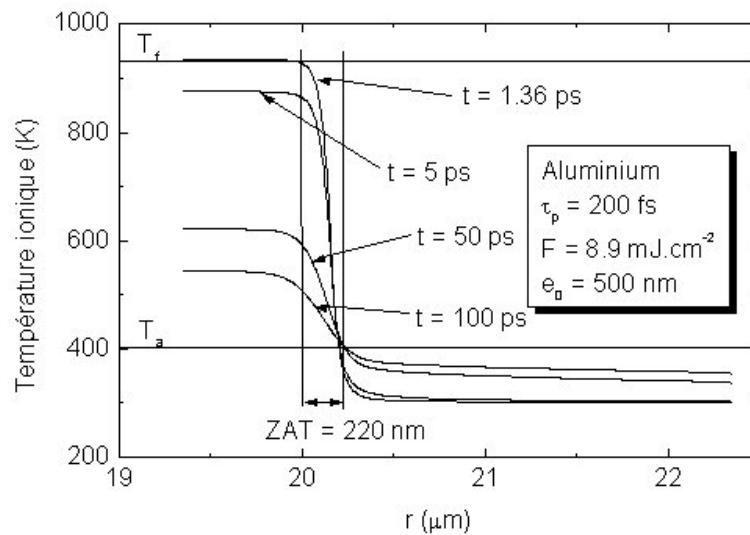


FIG. 2.39 – Evolution de la température du réseau en fonction de r . Durée de l'impulsion de $200fs$.

thermique L_{th} . Ils définissent la densité d'énergie déposée par le laser dans le volume déterminé par la longueur de pénétration optique par $\varepsilon_{\lambda_0} = F_T/\lambda_0$. Où F_T est la fluence seuil. Ils distinguent cette densité d'énergie de la densité d'énergie critique pour atteindre la fusion ou la vaporisation du métal définie comme $\varepsilon_T = F_T/L_{th}$. Pour des cibles d'épaisseur d , la fluence seuil est alors réduite du facteur d/L_{th} . Ainsi, pour des cibles plus épaisses que la longueur de diffusion thermique, la fluence seuil devient indépendante de l'épaisseur.

Une étude similaire a été menée dans le cadre du régime femtoseconde par Wellershoff *et al.* [WEL 99]. Leurs résultats sont semblables à ceux de Matthias *et al.*. Cependant, contrairement au cas du régime nanoseconde, Wellershoff *et al.* ont relié la dépendance de la fluence seuil en fonction de l'épaisseur non pas à la longueur de diffusion thermique "classique" développée par Matthias *et al.* mais à la longueur de diffusion des électrons chauds. Pour les métaux nobles, la notion d'électrons balistiques prend toute son importance avec cette formulation. En effet, la longueur de pénétration de ces électrons non thermalisés redéfinit un nouveau volume de dépôt d'énergie. La présence de λ_{bal} dans le terme source, aux côtés de λ_0 , se justifie ainsi. Cet élargissement du volume de dépôt d'énergie est à rajouter à la constante de couplage g , dans la justification des fluences seuil plus élevées pour les métaux nobles.

Le modèle à deux températures modélise très bien la dépendance de la fluence seuil en fonction de l'épaisseur ce qui constitue l'une des plus sûres validations du MDT. Dans la section suivante, nous présentons l'étude de la fluence seuil

en fonction de l'épaisseur dans le cas de l'aluminium.

Dans les résultats présentés dans ce travail, on remarque, pour le régime nanoseconde, que la fluence nécessaire pour atteindre la fusion en surface est typiquement deux fois plus faible que dans le cas de la cible épaisse. En effet, les résultats de la figure 2.16 fournissent une longueur de diffusion thermique dans la direction du faisceau de l'ordre de 4 à $6\mu m$. Pour la lame mince de $500nm$, l'épaisseur de la cible est donc inférieure à cette longueur de diffusion thermique et l'effet de saturation entre la face avant et la face arrière se met en place. La figure 2.35 montre cet effet de saturation entre les deux faces de la cible. La diffusion de la chaleur est alors bloquée par les limites de l'échantillon et la fluence nécessaire pour atteindre la fusion s'en trouve diminuée.

Cette homogénéisation de la température dans l'épaisseur de la cible joue un rôle prépondérant dans la diffusion de la chaleur dans la direction radiale. En effet, la figure 2.36 donne l'étendue de la ZAT radiale pour la lame mince en régime nanoseconde. Celle-ci mesure typiquement $20.7\mu m$ comparés aux $3.10\mu m$ calculés pour la cible épaisse. La saturation de la température dans l'épaisseur de la cible entraîne une diffusion de la chaleur dans le matériau en bordure de faisceau laser. En effet, la diffusion de la chaleur dans le matériau est beaucoup plus importante que celle due aux échanges thermiques avec le milieu extérieur. Il s'en suit un élargissement de la ZAT radiale.

Pour le régime femtoseconde, les résultats identiques pour la cibles de $10\mu m$ et celle de $500nm$ laissent supposer que la longueur de diffusion thermique

dans l'aluminium est inférieure à 500 nm. La section suivante valide cette hypothèse.

2.2.5 Fluence seuil en fonction de l'épaisseur pour une cible d'aluminium en régime femtoseconde

La comparaison des résultats obtenus pour des cibles d'épaisseur respectives de $10\mu m$ et $500nm$ nous a amenés à la conclusion que pour le régime femtoseconde il n'y avait pas de différence entre les deux situations. On explique ce constat en faisant l'étude de la dépendance de la fluence seuil en fonction de l'épaisseur e_0 de la cible modélisée. Ce type d'étude a déjà été effectué expérimentalement sur des échantillons de nickel et d'Or par J. Gütde *et al.* [GUD 98] [WEL 99] afin de comparer les longueurs de diffusion thermique électronique de ces deux métaux. Dans notre cas, on propose une étude similaire pour l'aluminium, basée uniquement sur la résolution du modèle à deux températures. La figure 2.40 donne le résultat obtenu.

On remarque une dépendance linéaire de la fluence seuil en fonction de l'épaisseur pour des épaisseurs d inférieures à $100nm$ environ. Au delà de cette valeur, on note une saturation de la fluence seuil qui n'évolue plus en fonction de l'épaisseur. Cette valeur de $100nm$ correspond à la longueur de diffusion des électrons chauds dans le métal. Les résultats présentés dans les sections précédentes utilisent des cibles d'épaisseurs supérieures à cette longueur de diffusion. Il n'y a donc pas d'effet dû à la face arrière. On comprend dans ces conditions la raison pour laquelle nous n'observons pas de différence entre les résultats sur la cible de $10\mu m$ et celle de $500nm$ dans le cas femtoseconde.

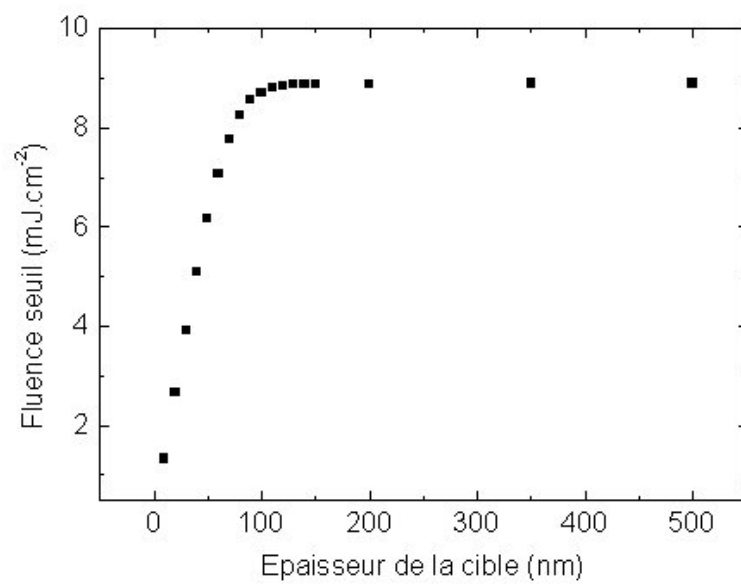


FIG. 2.40 – *Etude de la dépendance de la fluence seuil en fonction de l'épaisseur de la cible d'aluminium pour le régime femtoseconde.*

De façon similaire, Bödefeld *et al.* [BOD 03] ont étudié l'influence de l'épaisseur de la cible sur les seuils d'ablation dans le cas de l'or, de l'argent, du cuivre et de l'aluminium. Ils trouvent une longueur de diffusion thermique dans le cas de l'aluminium de $115nm$. Le seuil de dommage - défini par la visualisation sous microscope optique d'une ablation de la surface - est estimé à $110mJ.cm^{-2}$. Les valeurs des fluences ne peuvent être comparées avec celles que nous avons introduites dans le MDT. En effet, on rappelle que F_{abs} a, dans notre cas, un caractère purement théorique et ne saurait représenter une fluence réelle.

En plus de l'information que donne ce type de résultat sur les longueurs caractéristiques de dépôt d'énergie, cette étude de la fluence seuil en fonction de l'épaisseur a été utilisée par Hohlfeld *et al.* [HOH 98] pour l'extrapolation mono-coup d'expériences multi-coups grâce à la relation proposée par Jee *et al.* [JEE 88]. Leur étude fournit une autre façon de valider l'utilisation du modèle à deux températures dans le cas d'impulsions femtosecondes.

Ce résultat liant l'épaisseur de la cible à la fluence seuil de dommage constitue le dernier résultat de notre étude numérique.

Parmi les approximations faites, deux d'entre elles pourraient faire l'objet d'une recherche spécifique. En effet, la prise en compte de plusieurs impulsions et la température maximale du réseau constituent deux questions à considérer en vue d'un traitement plus complet de l'interaction.

2.2.6 Effet du nombre d'impulsions

L'accumulation des impulsions, voire leur juxtaposition dans le temps, peut être responsable d'une accumulation de chaleur au sein du matériau.

Dans le cas qui nous intéresse ici, la question de la juxtaposition ne se pose pas. Le laser utilisé délivre des impulsions de quelques centaines de femtosecondes à quelques nanosecondes à une fréquence de $1kHz$.

Pour se faire une première idée de l'accumulation, nous avons effectué la modélisation de la diffusion de la chaleur au sein du matériau en fonction du temps, en prolongeant le calcul sur des temps relativement longs afin de voir l'évolution de la température du réseau d'ions. Les résultats pour les régimes nanoseconde et femtoseconde sont représentés respectivement sur les figures 2.41 et 2.42 pour des cibles de $10\mu m$ d'épaisseur.

Pour le régime nanoseconde, on remarque que le temps nécessaire pour que la température initiale soit atteinte est de l'ordre de la microseconde. Pour le cas femtoseconde, ce temps est de l'ordre de la nanoseconde. A une fréquence de $1kHz$, il s'écoule $1ms$ entre chaque impulsion. A une telle fréquence, pour les régimes femtoseconde et nanoseconde, le système est revenu à sa température initiale à chaque nouvelle impulsion. Un effet d'accumulation apparaît peu probable. Dans ces conditions, les fréquences limites seraient de l'ordre du MHz pour le régime nanoseconde et de plusieurs centaines de MHz pour le régime femtoseconde. Dans le cas présent, la modélisation d'une interaction mono-coup est justifiée pour les deux régimes d'impulsion.

Pour prolonger cette étude, il serait souhaitable de réaliser une modélisation d'une série de quelques milliers d'impulsions afin de simuler quelques secondes d'interaction et de valider ou non nos hypothèses.

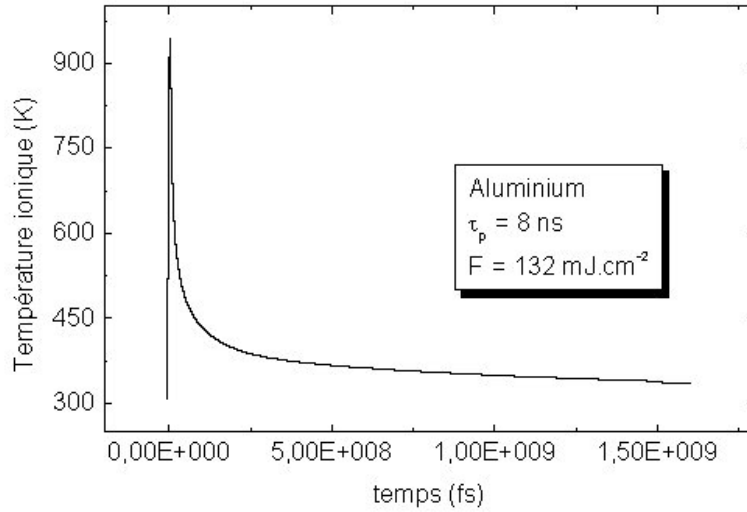


FIG. 2.41 – Température du réseau d’ions en fonction du temps pour une cible d’aluminium de $10\mu\text{m}$ d’épaisseur. Durée d’impulsion de 8ns.

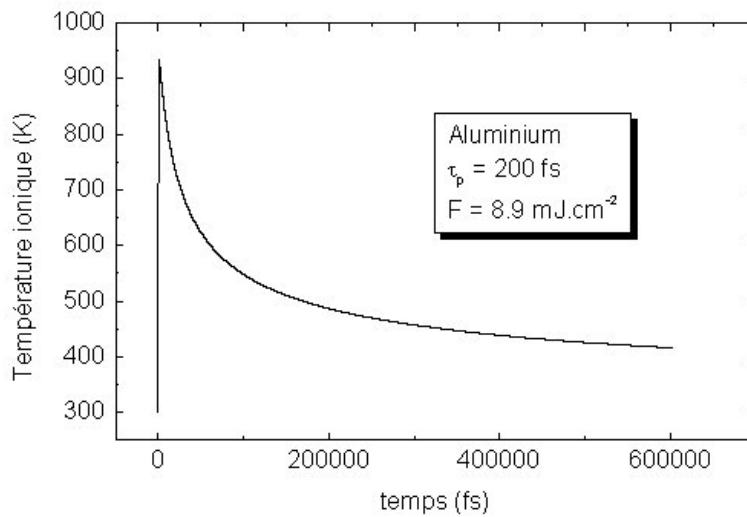


FIG. 2.42 – Température du réseau d’ions en fonction du temps pour une cible d’aluminium de $10\mu\text{m}$ d’épaisseur. Durée d’impulsion de 200fs.

2.2.7 Effet de la température maximale

Une deuxième question se pose à la suite de cette présentation de résultats numériques : Pourquoi ne pas avoir dépassé la température de fusion ?

Au cours de ce travail, nous avons donné deux justifications quant à la température maximale choisie pour la modélisation. La première est qu'il est aisé de caractériser la fusion d'une surface par une technique pompe-sonde notamment. Cette température définit la température de seuil de dommage optique [HOH 97]. La deuxième justification vient de ce que la question de la température d'ablation en régime ultra-bref n'est absolument pas tranchée. Une des hypothèses fortes actuellement est celle de l'explosion coulombienne [COL 03] [CHA 02]. Dans leurs travaux récents, Schmidt *et al.* [SCH 02] proposent une explication du transfert d'énergie des électrons balistiques et des électrons chauds vers le réseau, basée sur l'explosion coulombienne. Ils supposent en effet que les électrons chauds diffusent hors du volume d'interaction et qu'une partie d'entre eux est émise de la surface. Due à la grande conductivité thermique des métaux, cette perte d'électrons pourrait être compensée immédiatement par les électrons de conduction. Cependant, si la région irradiée par le faisceau est fortement modifiée - il rappellent qu'un état de type plasma a été proposé - cette région devient fortement chargée due à une augmentation de l'émission électronique et le processus d'explosion coulombienne devient envisageable.

D'autres études incorporent un terme d'évaporation dans le MDT. C'est le cas du travail de Ruf *et al.* [RUF 01] qui traite de l'ablation à travers le MDT en régime picoseconde. Les températures mises en jeu ne sont plus du même ordre de grandeur et les hypothèses que nous avons émises doivent être re-

formulées.

En régime nanoseconde, Körner *et al.* [KOR 96] rappellent que le phénomène d'ablation dépend fortement de la densité de puissance du faisceau laser. Ils montrent qu'aux basses densités de puissance la matière est principalement ablatée par évaporation. Aux fluences plus élevées, l'éjection de matière en fusion devient prépondérante. De la même façon, Nolte *et al.* [NOL 97] ont relié la fluence du laser au régime d'ablation en mode femtoseconde. Ils ont également mis en évidence deux régimes d'ablation. Aux basses fluences, aucune trace de matière fondue n'a été observée, alors que pour des fluences plus élevées, une fine couche de matériau fondu apparaît.

Dans leur étude sur l'ablation de solide en régime femtoseconde, Momma *et al.* [MOM 96] montrent également qu'à basses fluences, l'ablation en régime femtoseconde se fait par la création de phases de vapeur et de plasma et l'absence de phase liquide.

Dans notre cas des basses fluences, il serait souhaitable de compléter notre approche par une modélisation entraînant par exemple des températures d'évaporation en surface. Une approche comme celle développée par Ruf *et al.* [RUF 01], rapportée au mode femtoseconde, pourrait fournir une première avancée.

Finalement, un couplage entre le nombre d'impulsions et la température maximale atteinte serait une avancée certaine pour ce type de travaux.

2.3 Conclusion

Notre approche purement thermique de l'interaction laser-métal en mode ultra-bref a été jusqu'à présent essentiellement théorique. Les évolutions des températures en fonction du temps et dans la direction du faisceau ont été calculées. Le traitement numérique du MDT à deux dimensions nous a permis d'estimer des valeurs de ZAT pour le régime femtoseconde. L'étendue typique des ZAT, sur des cibles de $10\mu m$ d'épaisseur, a été calculée de l'ordre de quelques centaines de nanomètres pour le cas femtoseconde à plusieurs microns pour le régime nanoseconde. Les rapports des ZAT entre les régimes nanoseconde et femtoseconde ont été évalués de 4 à 14. Les calculs d'évolution des températures ont également été menés dans le cadre d'une cible d'aluminium de $500nm$ d'épaisseur. Une étude de l'influence de l'épaisseur de l'échantillon sur l'étendue de la ZAT et sur le seuil de dommage a ainsi pu être menée. En régime femtoseconde, nous avons pu estimer la longueur de diffusion thermique des électrons chauds dans l'aluminium à environ $100nm$. Enfin, deux propositions d'amélioration du modèle ont été proposées : l'une prenant en compte la température maximale mise en jeu dans l'interaction, l'autre faisant intervenir le nombre d'impulsions modélisées.

En complément de cette approche numérique, la suite de ce travail présente l'approche expérimentale que nous avons développée. Les échelles mises en jeu dans notre recherche de ZAT radiale étant très petites, il nous a fallu mettre au point des procédures expérimentales originales utilisant les techniques d'analyse propre à la physique des matériaux.

Le chapitre suivant décrit en détail ces démarches expérimentales. Il s'ar-

ticule sur une première partie qui présente la chaîne laser femtoseconde utilisée. La deuxième partie présente une première série d'expériences utilisant la technique de la microscopie électronique en transmission. Enfin, une troisième partie décrit la seconde procédure expérimentale utilisant la microscopie électronique à balayage.

Chapitre 3

Analyse expérimentale de la Zone Affectée Thermiquement

La majorité des résultats expérimentaux sur l'interaction laser-matière en mode femtoseconde traite de l'ablation elle-même. En effet, les auteurs s'intéressent à l'état de surface dans la région irradiée, à la profondeur d'ablation par tir, ... Dans notre cas, c'est la zone en périphérie de la surface irradiée qui est le sujet d'étude. Avant de présenter les résultats expérimentaux de mesure de la ZAT, nous dressons un bref compte-rendu des résultats expérimentaux du domaine.

Avant d'être utilisées pour des expériences d'ablation, les premières sources lasers ultra-brèves ont été utilisées dans des expériences de spectroscopie basées sur la technique pompe-sonde [ELS 87] [SCH 87] [BRO 87]. Elles ont permis de vérifier les modèles théoriques de relaxation des électrons et du réseau dans les métaux. Ces expériences étaient effectuées à très faible fluence, loin des seuils d'ablation de la matière. D'autres groupes ont travaillé dans le domaine des très hautes intensités et la génération de rayonnements X ultra-brefs [MIL 88] [COB 89] pour l'étude théorique des plasmas générés à ces intensités.

Pour des densités d'énergie proches du seuil d'ablation, les expériences se sont développées avec l'intérêt croissant des impulsions ultra-brèves pour les développements en micro-usinage. Corkum *et al.* [COR 88] ont été les premiers à étudier l'influence de la durée de l'impulsion sur le seuil de dommage optique qu'ils ont défini comme étant la température de fusion en surface de l'échantillon. Ils ont montré que pour des impulsions longues le seuil de dommage varie avec la racine carrée de la durée d'impulsion et devient constant lorsque la durée d'impulsion est inférieure à une certaine valeur qui dépend

du métal considéré. A titre d'exemple, ils ont montré que la durée d'impulsion critique de séparation des deux régimes est de $840ps$ dans le cas du cuivre et de $380ps$ dans le cas du molybdène.

Zhu a proposé une méthode basée sur l'étude de l'allure des débris en bordure de sillons en fonction de la durée d'impulsion. Il a ainsi mis au point une méthode permettant de déterminer la durée d'impulsion critique séparant les deux régimes d'ablation mis en évidence par Corkum *et al.* [ZHU 00].

Nolte *et al.* [NOL 97] ont étudié la profondeur d'ablation par tir en fonction de la durée d'impulsion. Ils ont également mis en évidence deux régimes d'ablation liant de façon logarithmique la dépendance de la profondeur d'ablation par tir à la fluence du laser. L'étude de l'interaction dans le cas des métaux a fait l'objet de nombreux travaux.

L'ablation de différents métaux par des impulsions sub-picosecondes dans le régime UV a été étudiée par Preuss *et al.*. Ces auteurs ont mesuré les seuils d'ablation à l'aide d'un spectromètre de masse mesurant les temps de vol de la matière ablatée. De plus, ils ont comparé les résultats d'une ablation sous vide et d'une ablation à l'air libre et ont mis en évidence que l'ablation à l'air libre est moins efficace que sous vide à cause des effets de re-déposition de matière [PRE 94] [PRE 95].

Des expériences en mono-coup ont été effectuées par Matthias *et al.* sur des métaux. Ils ont étudié les seuils d'ablation causés à la suite d'une seule impulsion en utilisant la détection photo-acoustique d'une onde de choc dans l'air [MAT 94]. Deux fluences seuils ont été mises en évidence. Le premier seuil correspond à la fusion de la surface et est détecté par une inspection en microscopie optique. Le deuxième seuil est détecté par la deflexion d'un

faisceau sonde qui arrive parallèlement à la surface irradiée. Cette deflexion est attribuée à une onde de choc signalant le déclenchement d'un processus d'évaporation de matière.

Dans des matériaux diélectriques, les travaux de Ashkenasi *et al.* révèlent la dépendance du seuil de dommage en fonction du nombre d'impulsions [ASH 99b] [ASH 99a].

Parmi ces résultats, seuls les travaux de Luft *et al.* se rapprochent des nôtres [LUF 96]. Ils étudient en particulier les effets thermiques et mécaniques sur des matériaux à la suite d'impulsions allant de $50ns$ à $200fs$. Ils s'intéressent aussi bien aux métaux (Cu, Mo) qu'aux diélectriques (Si). Contrairement à l'approche choisie ici, ils utilisent des conditions de micro-usinage à très forte fluence et ne trouvent aucune différence entre les régimes nanoseconde et femtoseconde. Le régime basse fluence exploré dans notre travail entraîne un tout autre comportement de la matière et une confrontation plus précise avec leur travail est proposée dans la suite.

De même, les travaux de Obara *et al.* [HIR 02] feront l'objet d'une discussion à la suite de la présentation de nos derniers résultats expérimentaux.

Dans le présent travail, deux approches expérimentales basées sur des arguments de physique des matériaux ont été développées. La première utilise la technique de la microscopie électronique en transmission (MET) alors que la seconde nécessite la microscopie électronique à balayage (MEB). Ainsi, la première partie de ce chapitre est consacrée à la chaîne laser utilisée pour ces deux approches expérimentales. La deuxième partie présente les résultats

obtenus par l'analyse MET de cibles d'aluminium percées par des impulsions nanosecondes et femtosecondes. Enfin, la troisième partie présente les résultats obtenus par l'analyse MEB d'échantillons d'aluminium micro-usinés dans chaque régime d'impulsion.

3.1 Description de la chaîne laser femtoseconde

Cette section a pour but de présenter la technologie des sources laser ultra-brèves et le matériel utilisé lors des opérations de micro-usinage. Plus de détails pourront être trouvés dans les différentes références citées. La plupart des données présentées au sujet du dispositif laser sont dues au travail de thèse de R. Le Harzic [LEH 03].

3.1.1 Etat de l'art des sources laser femtosecondes

Dès l'invention du laser par T.H. Maiman en 1960, les sources impulsionnelles ont fait l'objet de nombreuses recherches. En 1965, le régime picoseconde était atteint à l'aide d'un absorbant saturable placé à l'intérieur d'une cavité laser. Pour atteindre le régime femtoseconde, il a fallu attendre le début des années 1980, mais ce n'est qu'à partir de 1990 que ces lasers ont connu l'engouement sans cesse croissant ressenti aujourd'hui. A cette date, la mise au point de dispositifs femtosecondes utilisant des solides comme milieu actif a permis d'obtenir des puissances 100 fois supérieures à celles utilisant des colorants. La fiabilité des sources s'est elle aussi largement accrue. Cette recherche d'impulsions de plus en plus courtes et donc de puissances instan-

tanées de plus en plus élevées est résumée sur la figure 3.1 [Sal00].

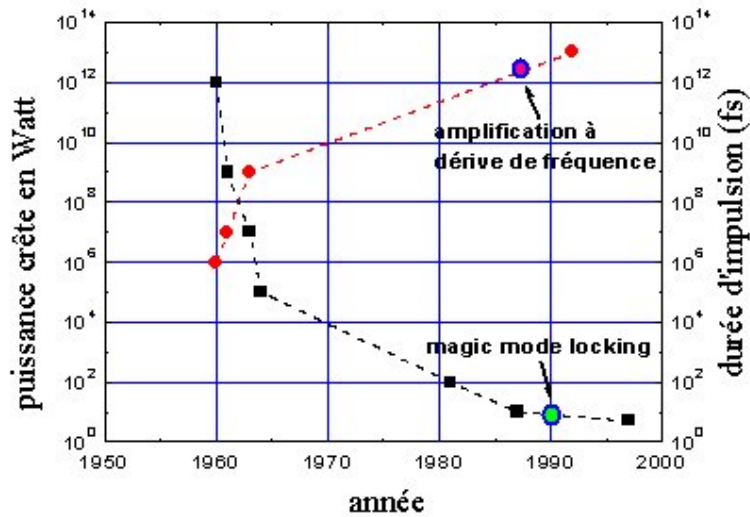


FIG. 3.1 – Evolution des durées d'impulsion (carrés) et des puissances crêtes (disques) au cours de ces quarante dernières années [Sal00].

Historiquement, deux découvertes majeures sont à l'origine du développement des sources femtosecondes :

- ◇ Le *magic mode locking* ou auto-blocage de modes dans le saphir dopé au titane pour la génération d'impulsions ultra-brèves [SPE 91].
- ◇ L'amplification à dérive de fréquence pour l'accroissement de la puissance crête [Sal00] [STR 85].

3.1.2 Principe de la génération d'impulsions femtosecondes

◇ OSCILLATEUR

Les techniques de production d'impulsions ultra-brèves peuvent être regroupées en deux grandes familles. Une première approche technique consiste en la modulation très rapide du gain dans un résonateur laser. Cette technique est limitée par la possibilité de fournir des signaux d'excitation de quelques nanosecondes¹. Pour générer des impulsions femtosecondes, une deuxième technique est utilisée : elle se base sur la modulation des pertes du résonateur. L'idée est d'augmenter considérablement les pertes dans la cavité laser et donc d'empêcher l'effet laser tout en augmentant l'inversion de population dans le milieu de gain : on parle de *blocage de cavité*. Pour cela, un élément dont la transmission augmente avec l'intensité qui le traverse, est introduit dans la cavité. Il peut s'agir de l'utilisation de l'effet Kerr², ou d'absorbants saturables dont l'absorption décroît avec l'énergie absorbée. Cette technique représente le fonctionnement des lasers dits *déclenchés* et est rappelée dans l'annexe B. Si le milieu actif est le $Ti : Sa$, le blocage de modes est assuré par le cristal lui-même : c'est l'auto-blocage de modes par effet Kerr. Il s'agit d'un effet non linéaire qui se traduit par un phénomène d'auto-focalisation³, les modes les plus intenses étant plus fortement focalisés que les autres modes. Une ouverture est placée dans la cavité afin de favo-

¹Par exemple, pour le pompage par diode laser, la modulation du courant d'excitation de la diode est limitée par la rapidité des circuits électroniques d'alimentation à quelques picosecondes.

²Utilisé dans le cas de cristaux $Ti : Sa$.

³Effet de lentille de Kerr.

riser le processus d'auto-blocage de modes et d'accroître la différence entre les pertes induites par les faibles intensités et celles plus limitées dues aux hautes intensités.

Les valeurs typiques et ultimes obtenues pour un oscillateur $Ti : Sa$ sont données dans le tableau 3.1.

	Typique	Ultime
Durée	15 – 100fs	5fs
Taux de répétition	100MHz	3GHz
Energie par impulsion	3nJ	30nJ
Puissance crête	300kW	3MW
longueur d'onde	800nm	690 – 1100nm

TAB. 3.1 – Performances typiques et ultimes d'un oscillateur $Ti : Al_2O_3$ [Sal00].

◇ AMPLIFICATION

Pour la majorité des applications, la puissance délivrée par ce type d'oscillateur laser n'est pas suffisante. Il convient d'amplifier les impulsions.

Deux types d'amplification sont utilisées : l'amplification multipassage et l'amplification régénérative. L'amplification multipassage utilise une structure de type papillon qui permet de passer de nombreuses fois dans le milieu par des trajets différents (Figure 3.2a). L'amplification régénérative consiste à piéger une impulsion dans un résonneur laser (Figure 3.2b). Une cellule de Pockels⁴ et un polariseur sont utilisés dans ce dispositif.

La différence principale entre ces deux techniques d'amplification est la mé-

⁴Cristal de KDP sur lequel on applique une tension.

thode de distinction entre l'entrée et la sortie : pour l'amplification multipassage cette distinction se fait géométriquement alors qu'elle se fait par polarisation dans le cas de l'amplification régénérative.

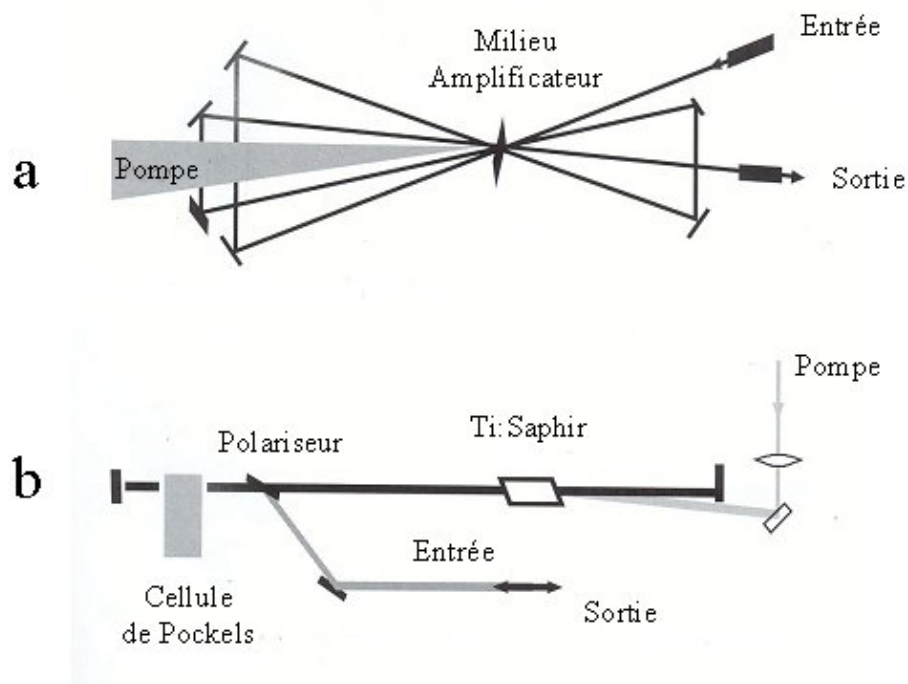


FIG. 3.2 – Schémas des dispositifs d'amplification. a) Amplification multipassage. b) Amplification régénérative.

Si les puissances obtenues en sortie d'oscillateur ne sont pas suffisamment élevées pour les applications de micro-usinage entre autres, l'amplification d'impulsions ultra-brèves permet d'atteindre des régimes de puissance de l'ordre de plusieurs dizaines de gigawatts ($10^{10}W$). Ces puissances sont bien supérieures aux seuils d'autofocalisation des milieux amplificateurs et les endommagent irrémédiablement. Il a donc fallu mettre au point une méthode

spécifique pour l'amplification des impulsions ultra-brèves. C'est la méthode d'*amplification à dérive de fréquence* [STR 85] mise en oeuvre par le groupe de G. Mourou. Celle-ci consiste à diminuer fortement la puissance crête de l'impulsion en l'étirant dans le temps, puis à amplifier cette impulsion "*allongée*" et enfin à la recompresser à sa durée initiale. Le principe de cette technique est décrit sur la figure 3.3.

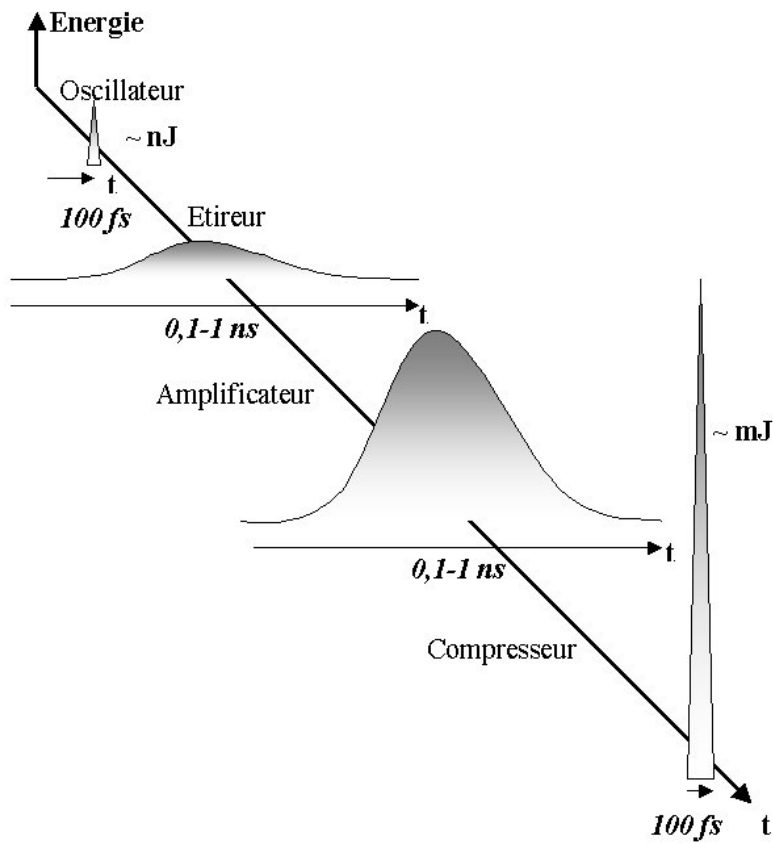


FIG. 3.3 – Schéma de l'amplification à dérive de fréquence.

Pour étirer puis re-comprimer les impulsions, on utilise une paire de réseau de diffraction. Les différentes couleurs composant l'impulsion suivent un che-

min différent et c'est donc une impulsion présentant un décalage de fréquence dans le temps (dérive de fréquence) que l'on amplifie. Après amplification, un passage dans un second système de réseaux permet de remettre les fréquences en coïncidence temporelle et donc de re-comprimer l'impulsion [MAR 87] [CHé 96].

3.1.3 Dispositif expérimental

Pour les essais de découpe et de perçage, les impulsions femtosecondes sont générées par un oscillateur (de type *vitesse duo*, société Coherent) qui est formé d'un laser de pompe à diode de type *verdi* et de l'oscillateur Ti :saphir. Le milieu de gain du laser de pompe est du $Nd : YVO_4$ ⁵. Ce dernier présente la particularité d'avoir un grand coefficient d'absorption à la longueur de pompe de $808nm$, qui est la longueur d'onde standard pour le pompage par diodes laser de puissance [LEH 03]. La bande d'émission du $Nd : YVO_4$ est centrée autour de $1064nm$. Un cristal de LBO est utilisé comme générateur de seconde harmonique pour passer de $1064nm$ à $532nm$, qui est la longueur d'onde optimale de pompage du *Ti : Sa*. Au final, l'oscillateur délivre une puissance moyenne d'environ $130mW$ à une fréquence de $80MHz$, ce qui entraîne des impulsions ayant une énergie de $1.6nJ$ environ. En sortie de l'oscillateur, la chaîne amplificatrice comporte un amplificateur régénératif et un amplificateur multipassages (de type *concerto*, société Thalès Laser).

⁵Néodyme : Gadoline Orthovanadate

Ses spécifications typiques sont :

- Energie par impulsion : $1.5mJ$
- Taux de répétition : $1kHz$
- Longueur d'onde : $800nm$
- Durée d'impulsion : $150fs$

L'utilisation de la même chaîne amplificatrice sans l'injection des impulsions femtosecondes issues de l'oscillateur permet d'obtenir des impulsions d'une durée de l'ordre de $7 - 8ns$.

A titre d'exemple, la figure 3.4 présente une découpe réalisée sur un échantillon d'acier inoxydable en régime femtoseconde. Lorsque tous les paramètres de réglage de la chaîne laser sont maîtrisés, la qualité de la découpe devient remarquable.

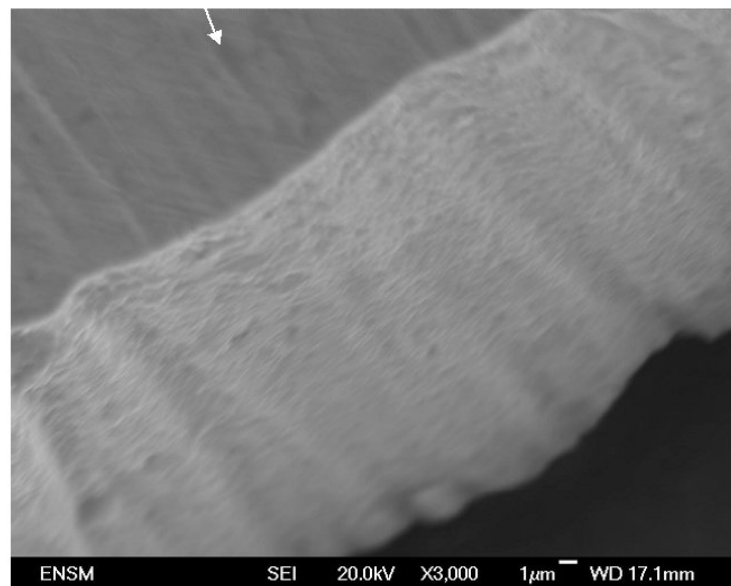
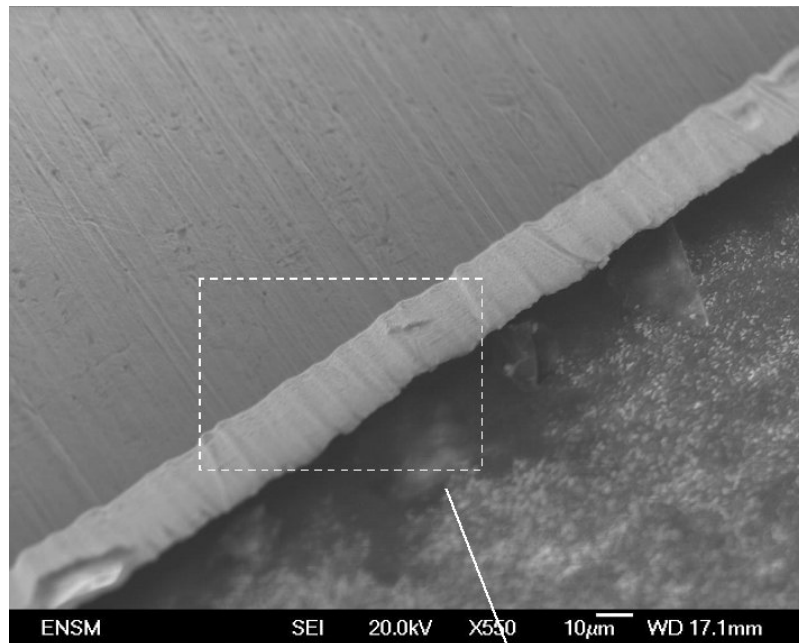


FIG. 3.4 – Photographie MEB d'une découpe réalisée en mode femtoseconde sur un échantillon d'acier inoxydable de 50μm d'épaisseur.

3.2 Etude expérimentale de la ZAT par microscopie électronique à transmission

En complément de l'approche numérique, une première expérimentation a été mise en place dans le but de déterminer l'étendue de la zone affectée thermiquement en bordure de la zone irradiée par le faisceau [LEH 02]. La technique de caractérisation utilisée est la microscopie électronique en transmission (MET).

3.2.1 Problématique

Comme le montrent les différents résultats publiés de la littérature ou ceux présentés en première partie de manuscrit, la détermination expérimentale d'une ZAT en régime femtoseconde apparaît particulièrement délicate. En effet, les zones sur lesquelles des effets thermiques sont attendus sont de l'ordre du μm . Les techniques de caractérisation doivent par conséquent avoir une résolution du même ordre de grandeur.

Une expérience permettant de mesurer des effets thermiques sur une échelle de l'ordre du micromètre en utilisant la technique MET a donc été mise au point. Le principe de cette première série d'expériences est basé sur les arguments de physique des matériaux développés au paragraphe 2.2.3. L'hypothèse que nous avons émise est la suivante : sous l'effet de la chaleur déposée par l'interaction du laser sur le métal, la microstructure doit évoluer sur une distance caractéristique définissant la Zone Thermiquement Affectée (radiale). La mesure de cette zone présentant une microstructure différente

de la matrice initiale fournit l'étendue de la ZAT.

Les échantillons utilisés sont des feuilles d'aluminium polycristallin déformés à froid fournis par la société *Goodfellow*. Par définition, l'analyse par MET nécessite que le faisceau d'électrons traverse l'échantillon. Ce dernier, pour être observable, doit donc avoir une épaisseur suffisamment fine pour ne pas absorber entièrement le faisceau. Cette épaisseur est directement reliée à la tension accélératrice du microscope. Dans le cas présent, le MET utilisé délivre une tension maximale de $200kV$ ⁶, l'épaisseur de la zone d'observation doit être inférieure à $500nm$ ⁷. De si faibles épaisseurs ne fournissent aucune tenue mécanique aux matériaux. La préparation des échantillons doit donc être adaptée.

3.2.2 Préparation des échantillons

Afin d'avoir des échantillons fins et suffisamment résistants mécaniquement, la technique de préparation consiste à amincir localement des échantillons initialement "épais". Ces échantillons sont appelés des *lames minces*. La figure 3.5 donne un schéma en coupe d'une lame mince. L'épaisseur initiale de la lame est de $100\mu m$ et son diamètre mesure $3mm$ - diamètre imposé par le dispositif amincisseur.

Malgré les essais de préparation d'échantillons d'aluminium, de cuivre et de nickel, l'amincissement s'est avéré acceptable uniquement dans le cas de l'aluminium. En effet, les lames de cuivre et de nickel présentaient un état de surface formé de trous et d'accumulation de matière rendant une analyse

⁶Philipps *CM200*.

⁷Une épaisseur d'échantillon de $5\mu m$ nécessite une tension de $1MV$.

par MET impossible. Pour cette analyse expérimentale, seul l'aluminium a donc été retenu.

L'outil utilisé pour obtenir une lame mince est un amincisseur électrolytique qui utilise la conductivité électrique de l'échantillon et le polit électrolytiquement. Le processus de polissage est stoppé par le passage d'un rayon lumineux au centre de la lame - passage qui manifeste le perçage de la lame. La lame est alors infiniment fine en son centre et seuls les bords du trou d'amincissement peuvent être analysés. La région exploitable est typiquement d'une centaine de microns sur les bords du trou d'amincissement. La figure 3.6 représente la photographie d'une lame mince. A gauche celle-ci est à taille réelle ; à droite son agrandissement au microscope optique met en évidence la présence du trou d'amincissement en son centre.

Le paragraphe suivant présente le dispositif expérimental mis en place pour le micro-perçage des lames minces.

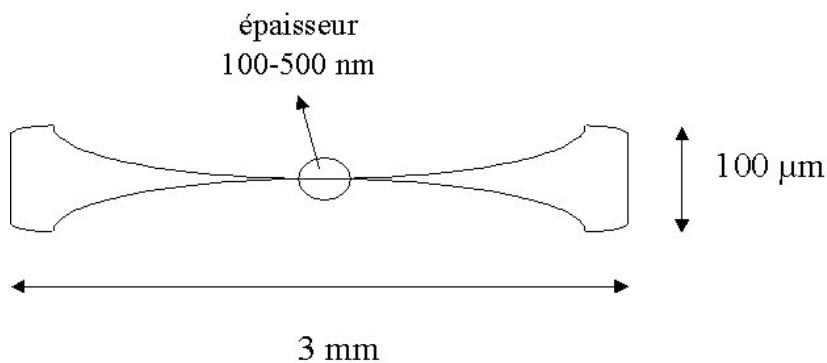


FIG. 3.5 – Schéma d'une lame mince.

3.2.3 Dispositif expérimental et micro-usinage

Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé lors des différentes manipulations est représenté sur la figure 3.7. Ce dispositif utilise l'amplificateur à dérive de fréquence "concerto" qui permet d'obtenir des impulsions de l'ordre de $1.5mJ$. De plus, ce dispositif permet de contrôler le nombre de tirs lasers et offre la possibilité de la confrontation nanoseconde/femtoseconde à la même longueur d'onde.

Contrôle du micro-usinage

◇ Les processus de micro-usinage sont visuellement observables en temps réel grâce à un système d'imagerie incohérente. Celui-ci consiste à récupérer, sur une caméra CCD, l'image due à la réflexion du laser He-Ne sur la surface

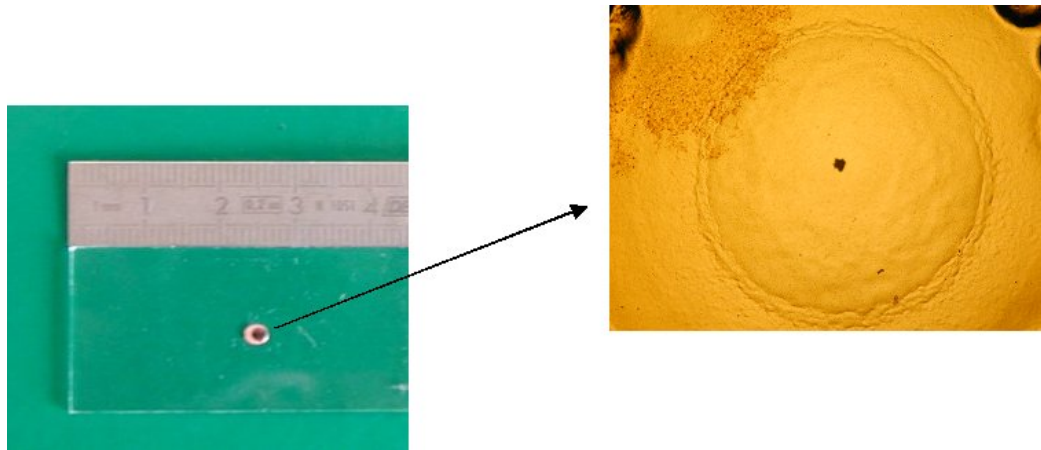


FIG. 3.6 – Photographie d'une lame mince. A gauche : à taille réelle. A droite : agrandie 10 fois, avec en son centre le trou dû au processus d'amin-cissement.

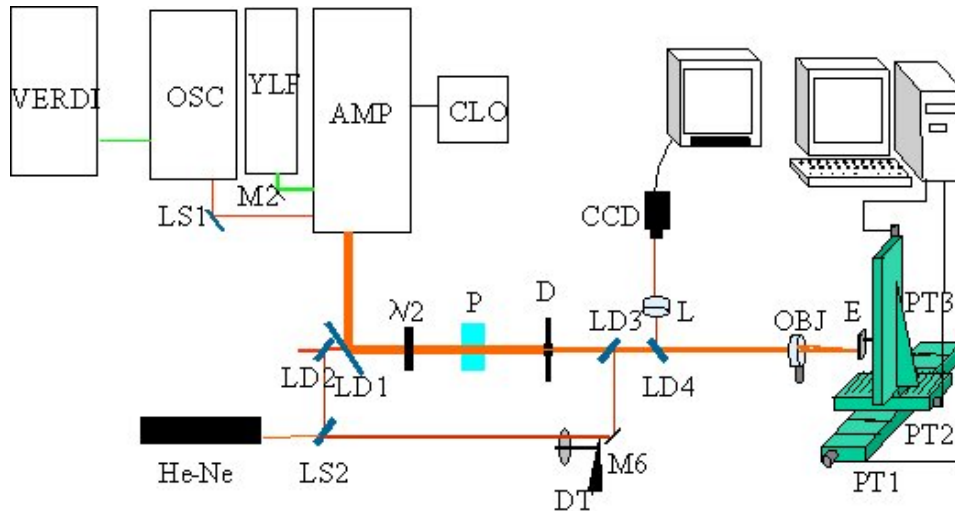


FIG. 3.7 – *Dispositif expérimental et ses caractéristiques techniques.*
Verdi : laser continu 532nm, 10W ; OSC : Oscillateur Ti :Saphir femtoseconde, 80MHz, 800nm, 1.6nJ/impulsion, 120fs ; YLF : laser nanoseconde Nd :YLF, 532nm, 20W, 1kHz, 400ns ; AMP : Amplificateur à dérive de fréquence "Concerto" (étireur + amplificateur régénératif + amplificateur 2 passages + compresseur), 1kHz, 800nm, 1.5mJ/impulsion, 150fs ; He-Ne : laser Hélium-Néon continu d'alignement et d'imagerie ; CLO : Synchronisation et compteur d'impulsions ; M_i : miroirs ; LD_i : lames dichroïques ; LS_i : lames séparatrices ; DT : diffuseur tournant ; OBJ : objectif de focalisation ; PT_i : platines motorisées de translation ; E : échantillon ; P : polariseur ; D : diaphragme ; L : lentille.

de l'échantillon. La précision de ce système d'imagerie est estimée à $5\mu m$. Issue du même laser He-Ne, une partie du faisceau, préalablement séparé à l'aide d'une lame séparatrice, sert à l'alignement du faisceau femtoseconde. Cette double utilisation du faisceau He-Ne permet à la fois de placer le faisceau femtoseconde précisément et de trouver le point focal des différentes lentilles ou objectifs utilisés. Pour le réglage du point focal, on doit cependant veiller à corriger l'aberration chromatique due à la différence de longueur d'onde des deux faisceaux concernés.

◇ Pour ce qui est de l'énergie disponible, sa régulation est possible grâce à la disposition sur le trajet du faisceau d'un dispositif comportant une lame demi-onde tournante et un cube polariseur. Le principe consiste à sélectionner la composante horizontale (P) du faisceau polarisé en sortie de chaîne laser, à le faire passer à travers la lame quart-d'onde tournante, puis à travers le cube polariseur. La lame tournante permet de commander l'angle de polarisation du faisceau incident sur le cube polariseur ; ainsi l'intensité de chacun des faisceaux en sortie du cube peut être réglée de manière dynamique. La figure 3.8 donne une représentation schématique de ce dispositif.

◇ Le dispositif expérimental permet de plus de sélectionner le nombre d'impulsions par l'intermédiaire d'un boîtier électronique développé au laboratoire. Ce dernier permet de travailler du monocoup à plusieurs milliers d'impulsions. La cadence est synchronisée sur les $1kHz$ du laser.

◇ Un diaphragme (D) est placé sur le trajet du faisceau laser femtoseconde de telle sorte qu'au plan image du diaphragme, le faisceau est de

forme rectangulaire, encore appelé "top-hat". Les effets de bord présents pour le faisceau gaussien sont ainsi éliminés. La position du diaphragme et son ouverture nécessaires pour obtenir le diamètre de perçage voulu sont déterminés à partir de la relation de conjugaison et de grandissement d'une lentille mince. Les échantillons sont placés dans le plan image du diaphragme ; il s'agit donc d'un micro-usinage au plan image dont les caractéristiques, en plus du contrôle géométrique du faisceau, permettent d'estimer la quantité d'énergie réellement disponible pour l'interaction. La forme typique d'un faisceau top-hat est rappelée sur les figures 1.10 et 1.11 présentées au chapitre 1.

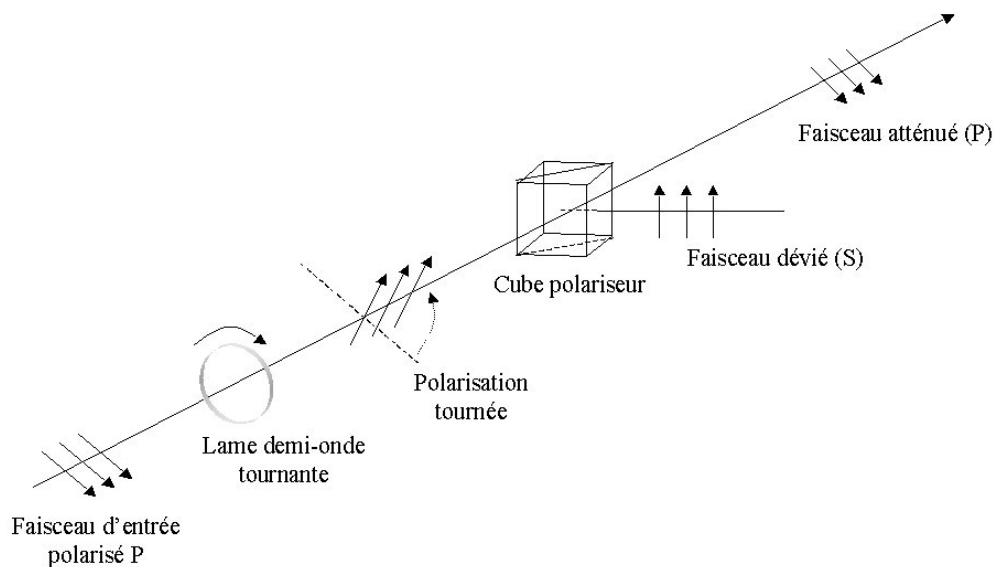


FIG. 3.8 – Schéma du dispositif permettant de choisir l'énergie de faisceau.

Micro-usinage des lames minces

Sur chaque lame mince, plusieurs impacts laser ont été réalisés. L'analyse MET impose une précision de quelques microns dans la localisation des impacts. La figure 3.9 donne deux exemples caractéristiques de lames minces d'aluminium après irradiation laser pour chacun des régimes d'impulsion. Les impacts laser sont distribués autour du trou d'amincissement. Les durées d'impulsion sont respectivement de $8ns$ et de $200fs$ pour un nombre de 1000 impulsions. Dans les deux cas l'irradiation a lieu dans le plan image du diaphragme. Les puissances moyennes mesurées avant la lentille de focalisation sont respectivement de $500mW$ et de $130mW$ pour les régimes nanoseconde et femtoseconde. L'efficacité du régime ultra-bref entraîne un seuil d'ablation plus faible que pour le régime nanoseconde. Sur la lame irradiée par le faisceau nanoseconde, un seul trou laser a été fait, alors que l'échantillon micro-usiné en régime femtoseconde présente trois trous laser répartis autour du trou d'amincissement. Dans les deux cas, les tirs laser ont été réalisés à moins de $100\mu m$ du trou d'amincissement.

3.2.4 Résultats et analyses

Comme il a été montré précédemment, les impacts laser sont situés à une distance inférieure à $100\mu m$ du trou d'amincissement. La méthode utilisée consiste à prendre plusieurs clichés représentant la microstructure polycristalline entre le bord du trou d'amincissement et le bord d'un trou laser. Ces clichés sont obtenus grâce à la plaque photographique placée sous l'écran phosphorescent du microscope. Un cliché typique est représenté sur la figure 3.10. En fonction de l'orientation cristalline, les grains apparaissent plus

ou moins sombres et les joints de grains sont alors délimités par une ligne séparant deux zones de contraste différent.

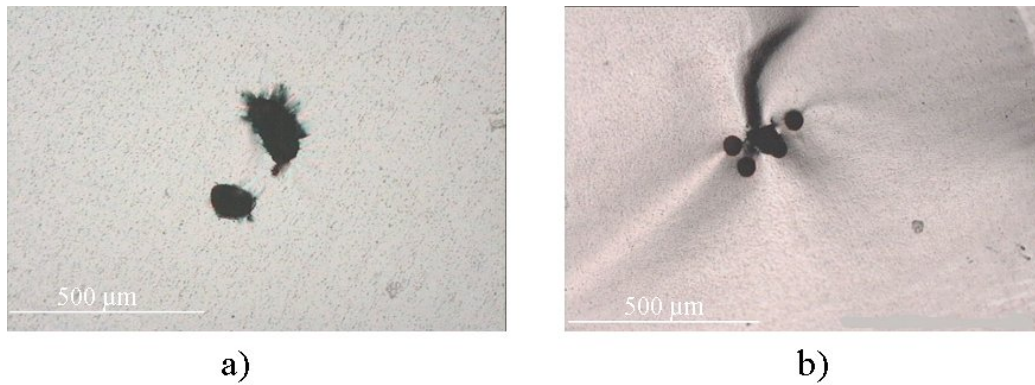


FIG. 3.9 – Photographies de deux lames minces d'aluminium. a) $\tau_p = 8ns$.
b) $\tau_p = 200fs$.

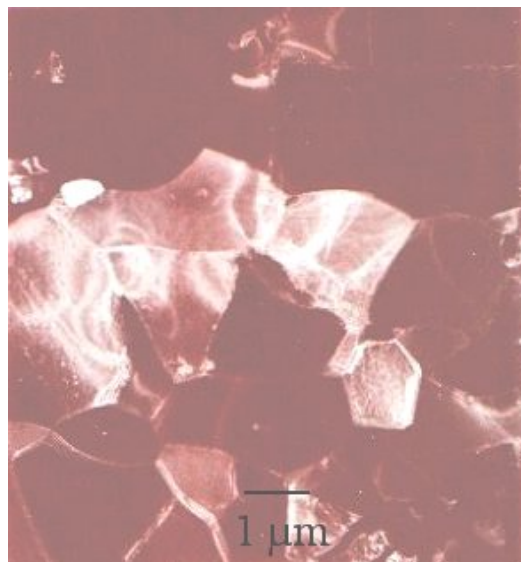


FIG. 3.10 – Exemple typique de cliché MET représentant la microstructure locale d'un échantillon d'aluminium ($\times 8500$).

Un calque du cliché est ensuite réalisé en vue d'une numérisation (Figure 3.11). La binarisation du calque à l'aide d'un logiciel d'analyse d'image permet le calcul de la mesure moyenne de la taille des grains en utilisant la technique du diamètre de Féret ⁸.

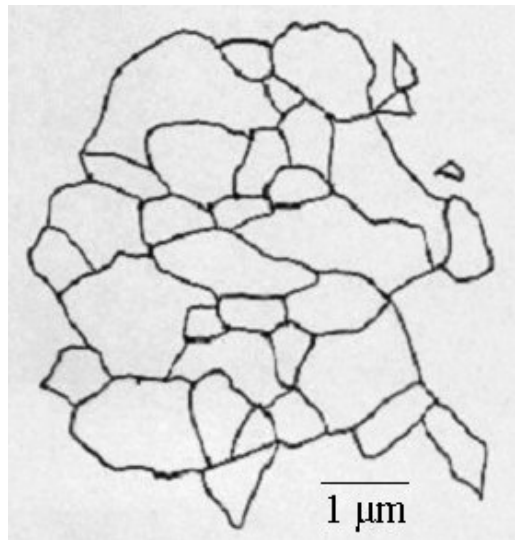


FIG. 3.11 – Calque réalisé à partir d'un cliché MET en vue d'une analyse d'image et de la mesure statistique de la taille de grain.

La taille moyenne de grain pour chaque cliché est représentée en fonction de sa distance au trou d'amincissement. Les figures 3.12 et 3.13 donnent les résultats de l'évolution de la taille de grain pour le régime nanoseconde et femtoseconde respectivement.

Pour chaque régime d'impulsion, une série de 1000 impulsions a irradié la cible avec un écart d'une milliseconde entre chaque impulsions. Les fluences

⁸Distance entre deux tangentes au contour apparent de la particule menées parallèlement à une direction fixe.

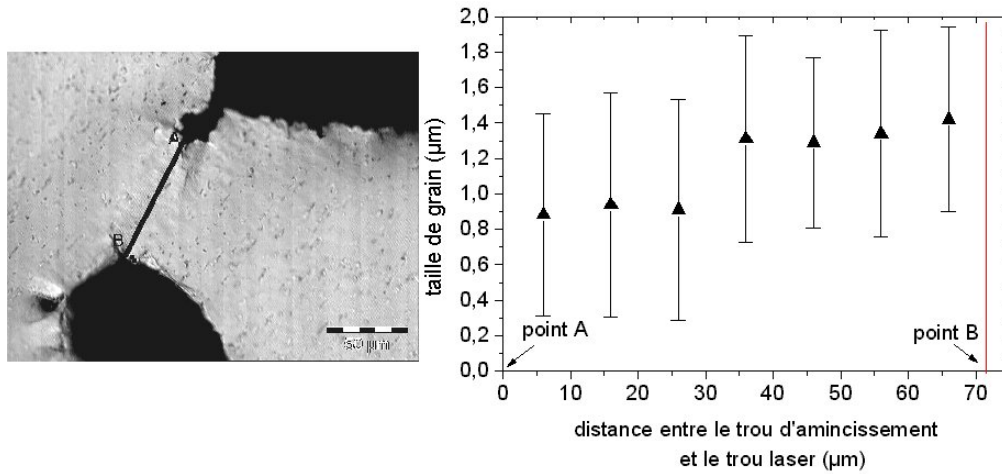


FIG. 3.12 – Photographie de la zone analysée et résultats des mesures de la taille de grain en fonction de la distance entre le trou d’amincissement et le trou laser pour le cas du régime nanoseconde.

étaient de $5J/cm^2$ et $2J/cm^2$ respectivement pour les cas nanoseconde et femtoseconde. Ces fluences ont été choisies au delà du seuil d’ablation dans les deux cas. Etant données les faibles épaisseurs des échantillons dans la zone d’irradiation, le nombre d’impulsions n’a pas d’effet significatif [LEH 03].

Sur chacune des photographies des figures 3.12 et 3.13 est représenté un segment $[AB]$. Le point A est situé en bordure du trou d’amincissement alors que le point B représente le bord d’un trou laser. A intervalles réguliers, plusieurs clichés représentant la taille des grains ont été effectués. Le graphique associé à chaque photographie résume les différentes valeurs de tailles de grains mesurées entre les points A et B . Les barres d’erreur représentent l’écart type des calculs obtenus à l’aide du logiciel d’analyse d’image utilisé.

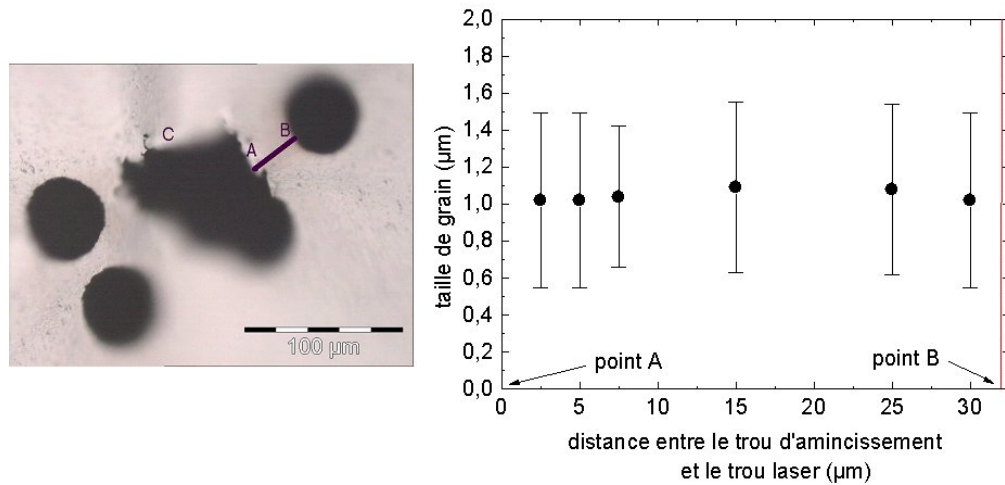


FIG. 3.13 – Photographie de la zone analysée et résultats des mesures de la taille de grain en fonction de la distance trou d'amincissement - trou laser pour le régime femtoseconde.

A la lecture de ce graphique pour le régime nanoseconde, deux tailles de grain différentes semblent former deux zones distinctes. En bordure du trou d'amincissement, une première zone d'environ $35\mu m$ de large donne une taille moyenne de grain de l'ordre de $1\mu m$. A l'approche du trou dû à l'irradiation laser, une deuxième zone étendue sur environ $35 - 40\mu m$ donne une taille moyenne de grain de l'ordre de $1.3 - 1.4\mu m$.

Pour ce qui est du résultat en régime femtoseconde, la taille moyenne des grains semble ne pas évoluer entre les points *A* et *B*, avec une valeur de l'ordre de $1\mu m$.

Dans le cas nanoseconde, la zone proche du trou laser présentant une taille

de grain supérieure à la taille de grain en bordure du trou d'amincissement est associée à la largeur de la zone affectée thermiquement dans la direction radiale du faisceau. Dans ce cas, la ZAT s'étend environ sur $35 - 40 \mu m$. L'hypothèse de travail pour l'analyse de ces résultats est basée sur un argument de physique des matériaux : à la suite de l'interaction laser-métal, la partie de l'énergie qui ne sert pas à l'ablation de matière se retrouve sous forme de chaleur au sein de la lame mince. La microstructure de l'aluminium formant cette lame mince est modifiée par activation thermique et donne naissance à une croissance de grain. Cette croissance de grain est la signature d'une élévation de température supérieure à $0.4T_f$, où T_f est la température de fusion du métal.

Pour le résultat en régime femtoseconde, la taille moyenne de grain stable autour de $1 \mu m$ indique que la microstructure n'a subi aucune évolution à la suite de l'interaction. Aucune ZAT n'est quantifiable pour ce régime ultra-bref. Plus précisément, une limite supérieure de la ZAT peut être estimée à $2 \mu m$. Cette valeur représente une limite moyenne de la distance à laquelle un cliché peut être pris et utilisé pour ce type d'analyse. En effet, à plus fort grossissement, le nombre de grains par cliché devient insuffisant pour ce type de mesure. Ces $2 \mu m$ représentent en quelque sorte la résolution spatiale de la méthode. Ils ne permettent pas de donner une mesure précise de la ZAT en mode femtoseconde mais fournissent une limite supérieure. Il est à noter qu'au delà de cette limite de $2 \mu m$, la taille initiale des grains de l'ordre de $1 \mu m$ représente elle aussi une limite.

L'information principale fournie par cette première série d'expériences est

que l'étendue de la zone affectée thermiquement dans la direction radiale du faisceau est estimée à environ $40\mu m$ pour le régime nanoseconde et est inférieure à $2\mu m$ en mode femtoseconde.

3.2.5 Discussion

Comme nous le disions en préambule de ce troisième chapitre, les travaux de Luft *et al.* [LUF 96] sont les plus proches de notre travail. Ces auteurs ont caractérisé des perçages effectués dans des métaux et du silicium en utilisant la microscopie optique et la microscopie électronique. Ils ont comparé les régimes nanoseconde et femtoseconde. Les micro-usinages en régime nanoseconde ont été réalisés avec un laser à vapeur de cuivre, délivrant des impulsions de $50ns$, à une fréquence $6.5kHz$. La fluence était de $700J.cm^{-2}$ pour un nombre de 240 impulsions et une profondeur de trou de $750\mu m$. L'usinage en régime femtoseconde a été fait avec un laser Ti :Saphir, délivrant des impulsions de $200fs$ à une cadence de $10Hz$ et une fluence de $700J.cm^{-2}$. Le nombre d'impulsions était dans ce cas de 145 pour une profondeur de trou de $900\mu m$.

En prenant des coupes transversales à différentes profondeurs de trou et en comparant les clichés de diffraction obtenus en microscopie électronique en transmission, ils ont mis en évidence des modifications microstructurales. La microscopie électronique à balayage leur a fourni des clichés photographiques de la microstructure en bordure de perçage. Ils ont montré que la ZAT dans le cas du cuivre était de l'ordre de $10\mu m$ en haut du trou d'usinage et qu'elle

décroissait lorsque que l'on s'enfonçait dans le trou jusqu'à atteindre une valeur de 3 à $5\mu m$ au fond. Ce résultat s'est avéré identique pour les deux régimes d'impulsion.

Contrairement à leur étude, nous avons réalisé nos expériences dans le cas du régime de basse fluence (quelques $J.cm^{-2}$). Comme nous l'avons montré avec les résultats numériques, les impulsions ultra-brèves présentent l'intérêt d'accéder aux seuil de dommage des matériaux avec des énergies plus faibles que celles nécessaires pour le régime nanoseconde. En travaillant dans le régime des très hautes fluences, Luft *et al.* ont minimisé les effets du régime ultra-bref. Leur taux d'ablation est de plusieurs microns par tir alors que dans son travail de thèse, Le Harzic a mesuré des taux de 30 à $50nm$ par tir dans le cuivre pour le dispositif du laboratoire [LEH 03]. Malgré des durées d'impulsion comparables, les quantités d'énergie apportées constituent deux régimes de micro-usinage différents.

Dans notre cas, une estimation supérieure de l'étendue de la ZAT a été donnée. Afin de s'affranchir de cette limite des $2\mu m$ imposée par la première technique, nous avons développé un second dispositif expérimental. Sa présentation ainsi que les résultats qui en découlent font l'objet de la section suivante.

3.3 Etude expérimentale de la ZAT par microscopie électronique à balayage

La deuxième étude expérimentale présentée dans ce travail est basée sur l'utilisation d'un microscope à balayage et nécessite une longue étape de préparation des échantillons.

3.3.1 Problématique

L'aluminium est toujours le métal étudié mais il n'est plus ici étudié sous une forme classique polycristalline. Issus du laboratoire *Métaux et alliages de Haute Pureté* [CNR 98], les échantillons utilisés sont des monocristaux d'aluminium pur à 99.996%.

Toujours dans l'optique de la mesure de la zone thermiquement affectée, nous cherchons à mettre en évidence une évolution microstructurale du matériau à la suite de l'interaction laser-métal. Un monocristal parfait est, par définition, un système en équilibre thermodynamique. Son arrangement microstructural est dans un état d'énergie minimale. Afin de s'éloigner de cet état d'équilibre, des défauts sont apportés au monocristal. Ces défauts sont d'origine mécanique. En effet, le monocristal est fortement déformé en compression plane. Sa densité de défauts - entre autres de dislocations - devient importante et le monocristal ainsi déformé devient un système particulièrement instable d'un point de vue thermodynamique. Par la suite, l'apport de chaleur dû au rayonnement laser, active thermiquement des modifications dans la microstructure déformée. La manipulation de micro-usinage a lieu sur ces échantillons monocristallins déformés. L'ultime étape de caractérisation de la

microstructure utilise la microscopie électronique à balayage (MEB) couplée à la méthode de diffraction d'électrons rétrodiffusés (EBSD). Cette méthode permet la caractérisation locale de l'orientation cristalline.

3.3.2 Préparation des échantillons

De l'état brut au pré-échantillon

La première étape consiste en la fabrication d'un barreau monocristallin. La méthode utilisée permet de préparer des monocristaux et des bicristaux d'orientations imposées [BOO 70]. Elle consiste à solidifier, dans une direction et à une vitesse déterminées, un échantillon métallique fondu dans une nacelle horizontale. Le gradient thermique nécessaire à la fabrication du monocristal est obtenu à l'aide d'un élément chauffant mobile qui se déplace à l'intérieur d'un tube chauffant fixe. L'orientation cristallographique des échantillons est imposée par un germe monocristallin (ou bicristallin pour la préparation des bicristaux) convenablement disposé au contact du métal liquide à partir duquel la solidification débute. La fabrication a lieu sous atmosphère contrôlée. En sortie de nacelle, le monocristal se trouve sous la forme d'un barreau métallique avec comme direction privilégiée la direction de croissance du monocristal. Les trois directions d'une telle barre monocristalline sont choisies par l'opérateur. Dans notre cas, l'orientation choisie est l'orientation *cube* représentée sur la figure 3.14. Ce choix d'orientation est justifié dans la suite.

Compression plane

La technique de déformation utilisée est la compression plane à froid en *channel-die*. Elle consiste à placer l'échantillon à déformer dans la rainure d'un bâti. La largeur de cette rainure est fixée, empêchant ainsi la déformation de l'échantillon dans la direction transverse. Un outil complémentaire vient comprimer l'échantillon qui se déforme plastiquement sous l'effet de la contrainte (Figure 3.15).

Par analogie avec le laminage, la direction de compression est appelée Direction Normale (DN), la direction contrainte par le channel-die Direction Transverse (DT), et la direction d'allongement Direction de Laminage (DL).

Pour la manipulation de compression, l'échantillon doit présenter des dimensions imposées par la machine de compression. Il a par conséquent été nécessaire d'extraire un échantillon monocristallin du barreau initial. Pour

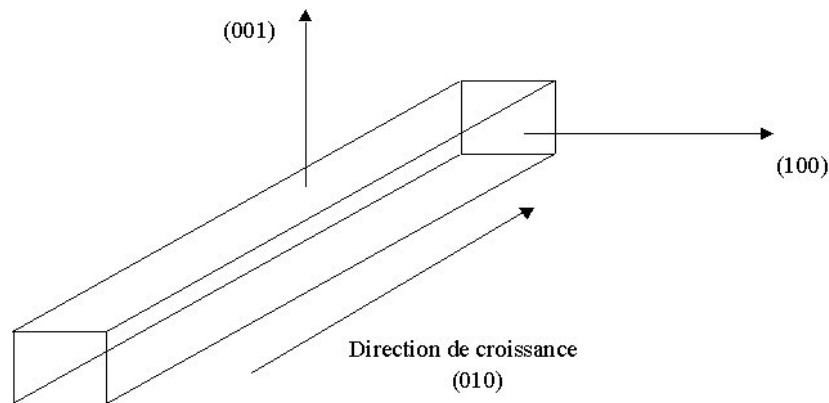


FIG. 3.14 – Représentation schématique d'un barreau monocristallin d'orientation cube.

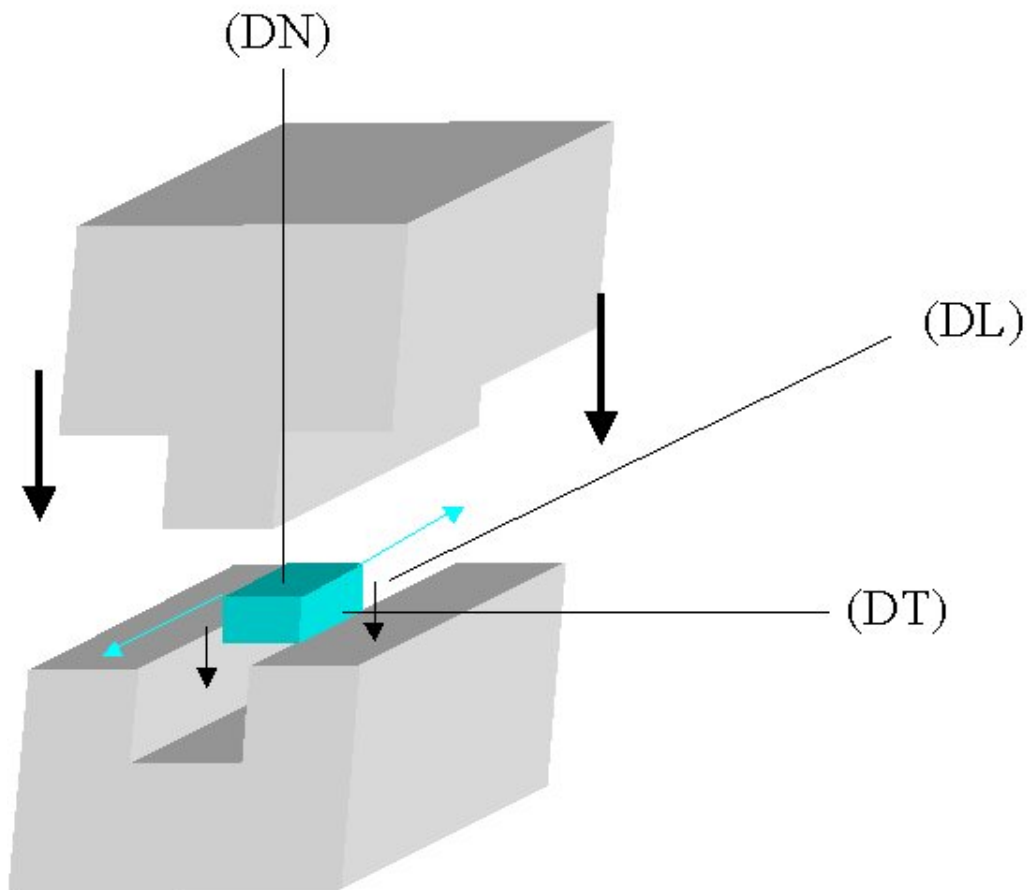


FIG. 3.15 – Schéma représentant la technique de channel-die utilisée pour déformer à froid les échantillons d'aluminium monocristallin.

cela, une scie de haute précision a été utilisée ainsi qu'une scie à fil dans le but de limiter l'écroûissage dû aux découpes. L'échantillon typique avant compression est un parallélépipède rectangle de 7mm de large imposées par la largeur du channel-die et de 6.5mm de haut. Sa longueur est d'environ 6mm . La direction de laminage est la direction de croissance du barreau monocristallin. L'ensemble des directions remarquables est résumé sur la figure 3.16 en fonction du repère fixe du laboratoire (X_1, X_2, X_3).

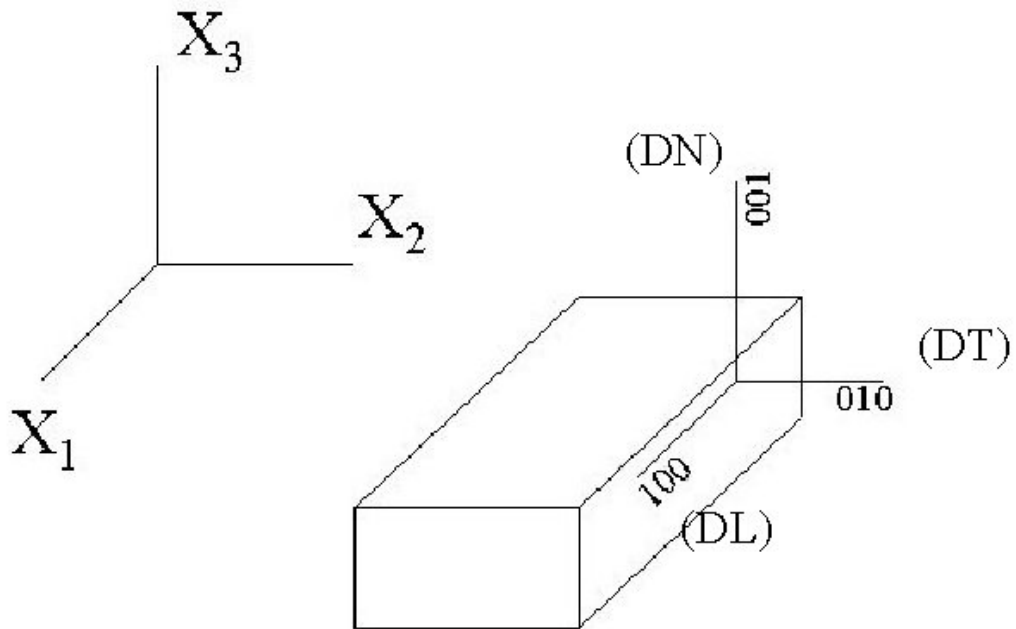


FIG. 3.16 – Directions de l'échantillon formant l'orientation cube et directions de déformation au sein du repère du laboratoire.

Afin de justifier le choix de l'orientation cube, un rappel de mécanique de la déformation est nécessaire. On définit le degré de déformation d'un échantillon en fonction de sa hauteur initiale et de sa hauteur après compression. La relation est la suivante :

$$\varepsilon = \ln \frac{e_0}{e} \quad (3.1)$$

Où e_0 et e sont respectivement la hauteur initiale de l'échantillon et sa hauteur finale.

Pour des valeurs de ε supérieures à 0.2 – 0.4, la déformation en compression plane de l'aluminium d'orientation cube est fortement hétérogène [BAS 00] [BAS 99]. La microstructure se décompose en bandes de déformation. L'ensemble microstructural devient instable d'un point de vue thermodynamique avec une instabilité accrue aux frontières séparant deux bandes d'orientation distinctes. Notre démarche va alors consister à analyser la microstructure des échantillons dans ces zones frontières.

Analyse des orientations cristallines

Les échantillons traités dans ce travail ont été déformés à $\varepsilon = 2$. Avec une hauteur initiale moyenne de $6mm$, les échantillons prêts à être micro-usinés ont une épaisseur de l'ordre de $800\mu m$.

Une manière de contrôler la décomposition de la microstructure en bandes de déformation consiste à analyser l'échantillon par diffraction de rayonnement X. Dans le cas présent, l'analyse a fourni les diagrammes de diffraction sous la forme de figures de pôles. La figure 3.17 représente les figures de pôle (111) donnant l'orientation cristalline d'un échantillon avant (Figure 3.17a) et après (Figure 3.17b) déformation. Ces figures de pôles donnent, dans une projection stéréographique, la position des pôles (111) du cristal dans le référentiel

fixe du laboratoire. La figure 3.17c représente une cartographie EBSD ⁹ de la structure en bandes de déformation. La technique EBSD, décrite dans la suite, utilise la microscopie électronique à balayage.

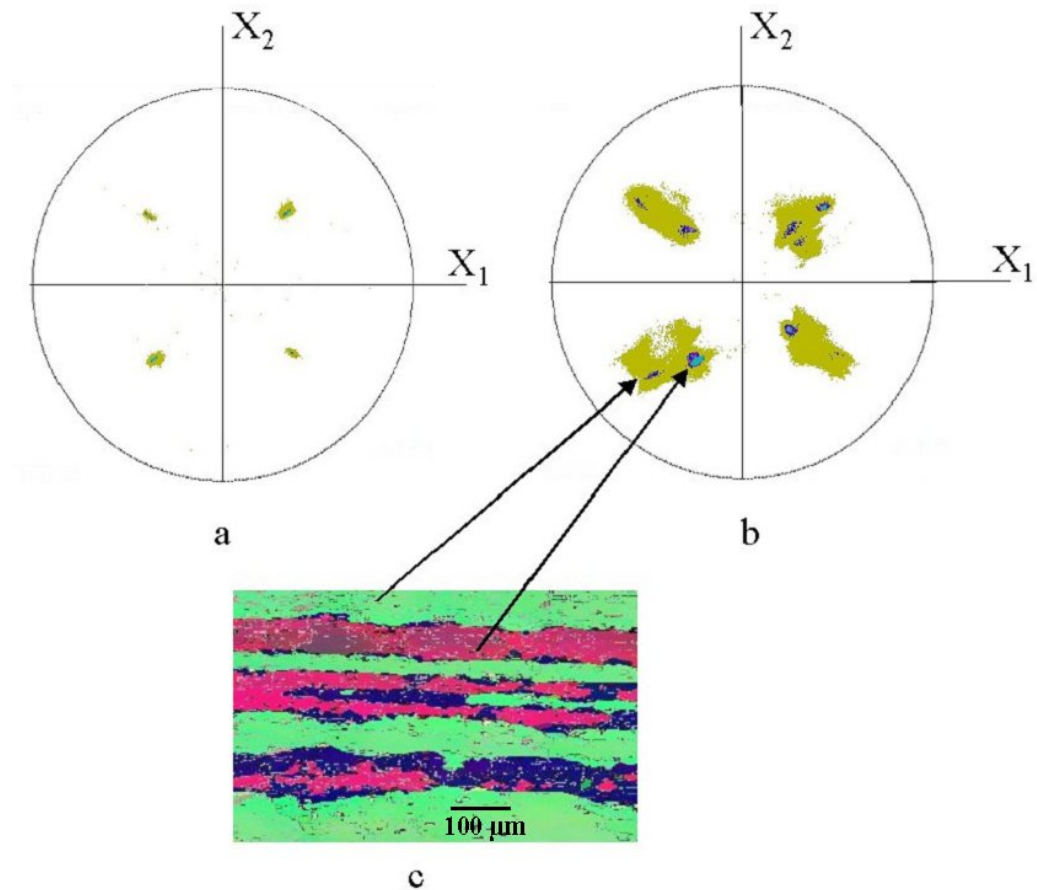


FIG. 3.17 – *Figures de pôles d'un échantillon d'aluminium obtenues par diffraction X. a) Avant déformation. b) Après déformation. c) Structure en bandes de déformation obtenue par analyse EBSD.*

Avant déformation, la structure est purement de type cube. Après la manipulation de compression, on constate un élargissement des pôles et plus

⁹Electron Back Scattered Diffraction.

précisément une décomposition des pôles en deux orientations séparées de quelques degrés. Ces deux orientations formées pendant la déformation sont distribuées spatialement en bandes parallèles à la direction de d'élongation X_1 . L'ensemble de ces informations est indispensable à l'analyse finale des échantillons après irradiation laser.

3.3.3 Micro-usinage

Le dispositif expérimental de micro-usinage est identique à celui utilisé pour les lames minces (Figure 3.7). Les fluences mises en jeu sont de $5J/cm^2$ pour le régime nanoseconde et de $2J/cm^2$ pour les impulsions femtosecondes. Les durées d'impulsion sont également inchangées : $8ns$ et $200fs$ pour chaque régime d'impulsion. Contrairement au cas des lames minces qui étaient percées, les échantillons sont ici micro-gravés sous forme de sillons suivant la direction transverse. Ainsi, le faisceau laser balaie l'échantillon perpendiculairement aux bandes de déformations. L'échantillon est fixé sur les platines de translation qui se déplacent à la vitesse de $2mm.s^{-1}$. Un sillon pour chaque régime d'impulsion est réalisé sur le même échantillon. Les sillons sont séparés d'environ $5mm$ (Figure 3.18).

Pour garantir une observation valable, le nombre de passages du faisceau sur l'échantillon est fixé au préalable à 500. Pour des raisons de défocalisation, après un certain nombre de passages, l'ablation de matière s'arrête. La figure 3.19 présente les profils des sillons obtenus à l'issue des 500 passages. Les images ont été obtenues par microscopie optique avec un grandissement de 10. L'efficacité du régime femtoseconde (Figure 3.19b) entraîne un sillon quasiment deux fois plus profond que pour le régime nanoseconde (Figure 3.19

a). La profondeur caractéristique des sillons est de l'ordre de $300\mu m$ pour le cas nanoseconde et de $500\mu m$ pour le régime femtoseconde.

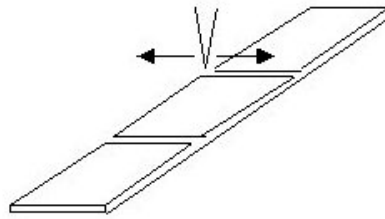
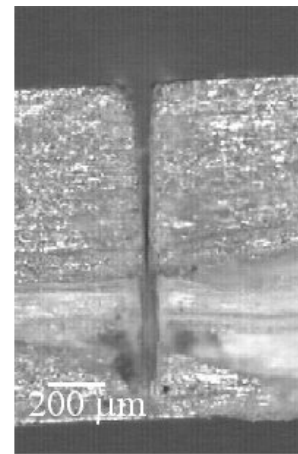


FIG. 3.18 – *Sillons réalisés en régime nanoseconde et femtoseconde sur l'échantillon déformé.*



a



b

FIG. 3.19 – *Vue au microscope optique ($\times 10$) du profil des sillons micro-usinés sur un échantillon d'aluminium. a) Régime nanoseconde. b) Régime femtoseconde.*

L'analyse MEB et plus particulièrement la méthode EBSD nécessitent un très bon état de surface. Après les étapes de compression plane et d'irradiation laser, il est par conséquent indispensable de préparer la surface de l'échantillon.

3.3.4 Préparation de la surface à analyser

Plusieurs techniques de polissage de surfaces peuvent être utilisées. Le polissage électrolytique est à priori la méthode qui permet d'obtenir le meilleur état de surface. Cette technique utilise des propriétés électriques de l'échantillon. Cette méthode n'est pas adaptable de façon satisfaisante à notre cas. En effet, l'attaque préférentielle due à l'effet de pointe électrostatique entraîne une érosion sur les bords anguleux du sillon laser. La zone à analyser se trouve perturbée. Les différents polissages chimiques tels le réactif de Keller n'ont pas apporté de réelle amélioration. Le choix s'est finalement porté vers un polissage mécanique utilisant différents feutres pour terminer par une silice colloïdale. Afin d'éviter tout effet d'érosion mécanique et pour un polissage automatique, l'échantillon est au préalable enrobé dans une résine de forte résistance. La figure 3.20 représente la photographie de l'échantillon après enrobage. L'état final de surface est un polissage miroir en conditions optimales pour une analyse en EBSD.

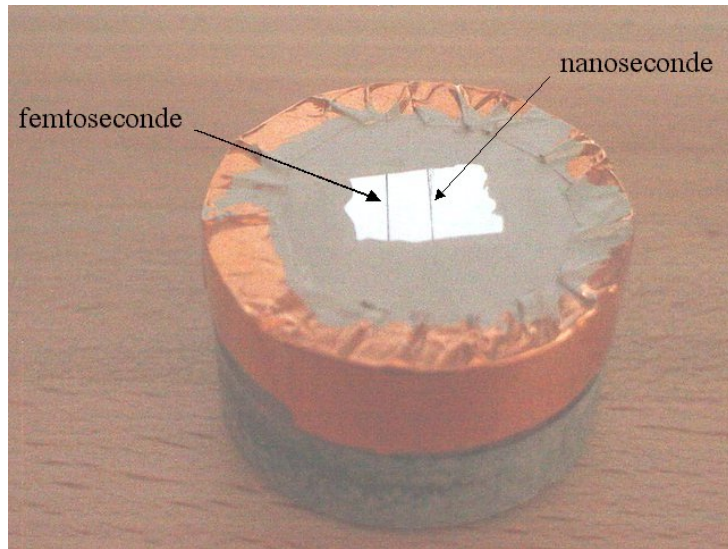


FIG. 3.20 – Photographie d'un échantillon enrobé, poli mécaniquement. L'intérieur des sillons est rempli de résine.

3.3.5 Résultats et analyses

Le microscope utilisé est un microscope électronique à balayage à émission de champ ¹⁰. Un détecteur d'électrons secondaires permet de générer une imagerie haute résolution. Pour l'analyse en EBSD, une caméra ultra-sensible collecte les électrons rétrodiffusés avant une analyse entièrement informatisée.

Imagerie MEB des découpes laser

Avant de présenter les résultats de l'analyse EBSD, les figures 3.21 et 3.22 présentent deux photographies de l'échantillon au voisinage des sillons. La figure 3.21 représente le sillon micro-usiné en régime nanoseconde et la figure 3.22 celui obtenu avec le mode femtoseconde.

Pour chaque figure, le grossissement est de 650 fois. La forte intensité

¹⁰JEOL JSM-6500F Field Emission Scanning Electron Microscope.

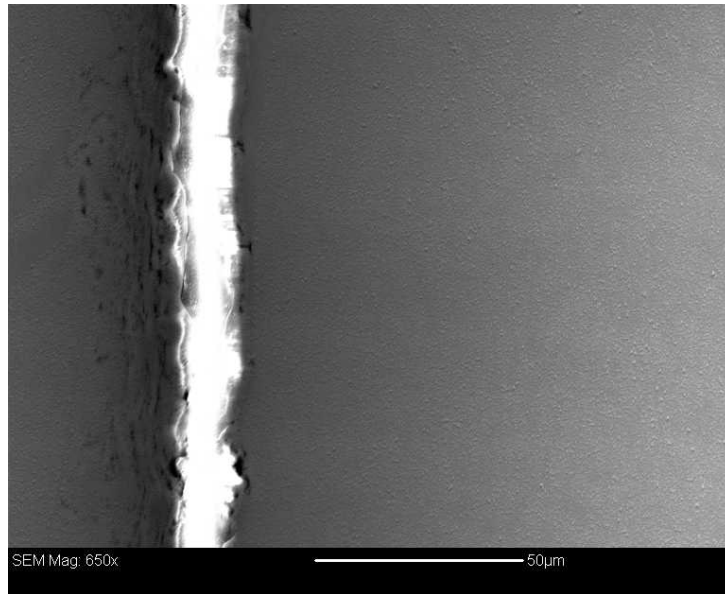


FIG. 3.21 – Photographie MEB ($\times 650$) du sillon réalisé en régime nanoseconde.

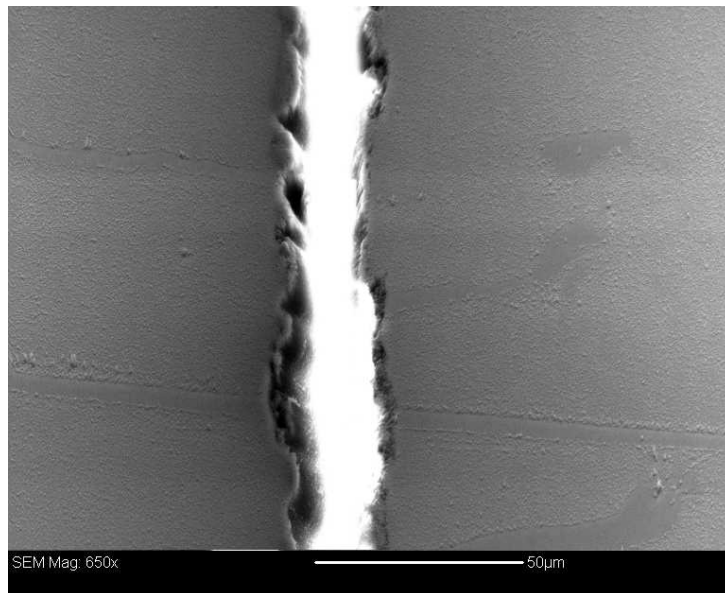


FIG. 3.22 – Photographie MEB ($\times 650$) du sillon réalisé en mode femtoseconde.

à l'intérieur des sillons est due à la résine. Cette résine, non conductrice de courant, est le siège d'un phénomène de charge. Les électrons s'y accumulent et le détecteur y est beaucoup plus sensible. Sur ces photographies, la qualité des micro-usinages est altérée par la préparation métallographique des échantillons. La résine permet de limiter l'effet d'usure préférentielle en bordure de sillon due au polissage mécanique mais ne le supprime pas entièrement.

Cartographies EBSD

La principe d'analyse de la microstructure par diffraction des électrons rétrodiffusés repose sur la formation de diagrammes de *Kikuchi* qui sont des projections de la configuration géométrique des plans réticulaires. L'incidence du faisceau sur la surface de l'échantillon est déterminante : la rétrodiffusion ne l'emporte sur l'absorption que pour une inclinaison de l'échantillon supérieure à 45° , les conditions optimales étant entre 70° et 80° . Dans notre cas l'inclinaison est de 70° ; le faisceau électronique est diffusé de façon inélastique dans toutes les directions à l'intérieur de l'échantillon. Il y a alors création d'une source interne divergente qui émet des électrons interagissant de manière élastique avec l'ensemble des plans atomiques du réseau cristallin. Pour chaque famille de plans diffractants, il existe nécessairement un sous-faisceau électronique diffusé en incidence de Bragg. Ces électrons, diffractés selon deux cônes très ouverts, se projettent sur l'écran phosphorescent qui coupe leur trajectoire (Figure 3.23). Les angles de Bragg sont de l'ordre de 0.5° et les hyperboles sont assimilables à des droites. Chaque famille de plans réticulaires produit ainsi deux droites parallèles dont la largeur de bande est proportion-

nelle à l'angle de Bragg. Dans la configuration actuelle, une caméra ultrasensible recueille le signal de l'écran phosphorescent et le transforme en signal numérique. Le logiciel *CHANNEL5* permet l'indexation automatique des lignes de Kikuchi.

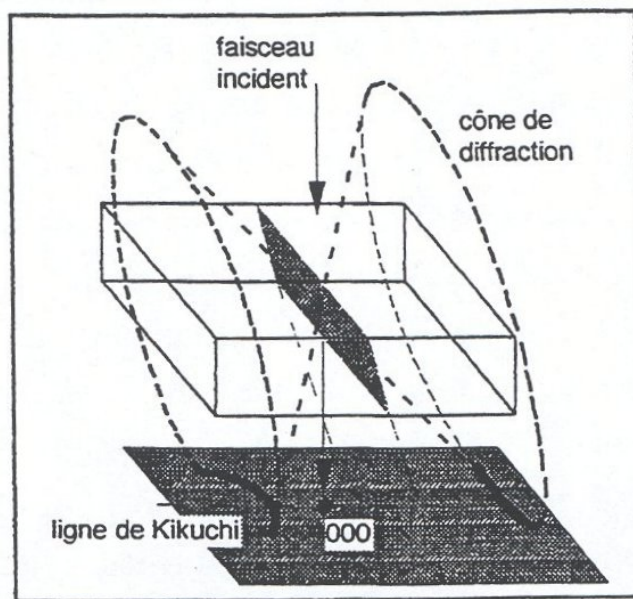


FIG. 3.23 – Schéma de formation des lignes de Kikuchi en EBSD.

L'orientation cristallographique est analysée point par point pour finalement reconstituer une carte des orientations cristallines. Le pas de déplacement entre chaque point a été choisi de $100nm$. Les trois angles d'Euler sont calculés pour chaque point. Finalement, un code de couleurs reconstitue une cartographie de l'échantillon en fonction des valeurs des angles d'Euler. Dans notre cas, l'analyse des orientations cristallines a été effectuée du bord du sillon jusqu'à une distance de $80\mu m$ dans la matrice.

◇ Résultats

Les figures 3.24 et 3.25 représentent les orientations cristallines obtenues par EBSD en bordure du sillon micro-usiné respectivement en mode nanoseconde et femtoseconde. Le petit encart sur le bord de chaque cartographie représente les deux micro-sillons et les bandes de déformation de l'échantillon d'aluminium. L'extrémité gauche des cartographies où aucune indexation n'a été réalisée représente l'intérieur du sillon. Les nuances des couleurs symbolisent les variations des angles d'Euler. Deux orientations principales sont retrouvées. Elles correspondent aux deux orientations légèrement décalées de l'orientation initiale cube. Un agrandissement de la zone en bordure de micro-sillon est proposé sur chaque figure.

- La cartographie obtenue dans le cas nanoseconde présente, en bordure de sillon, et dans la région interbande, une zone formée de petits grains d'orientations différentes. L'étendue de cette zone est environ de $5\mu m$, ce qui correspond à la taille moyenne des grains dans cette région.
- Pour le résultat concernant le régime femtoseconde, on remarque également une zone formée de petits grains en bordure de sillon. Cette zone est plus étendue dans la région interbande. La zone s'étend typiquement sur $2 - 3\mu m$ avec des grains sensiblement plus petits que dans le cas nanoseconde et répartis de façon homogène le long du sillon.

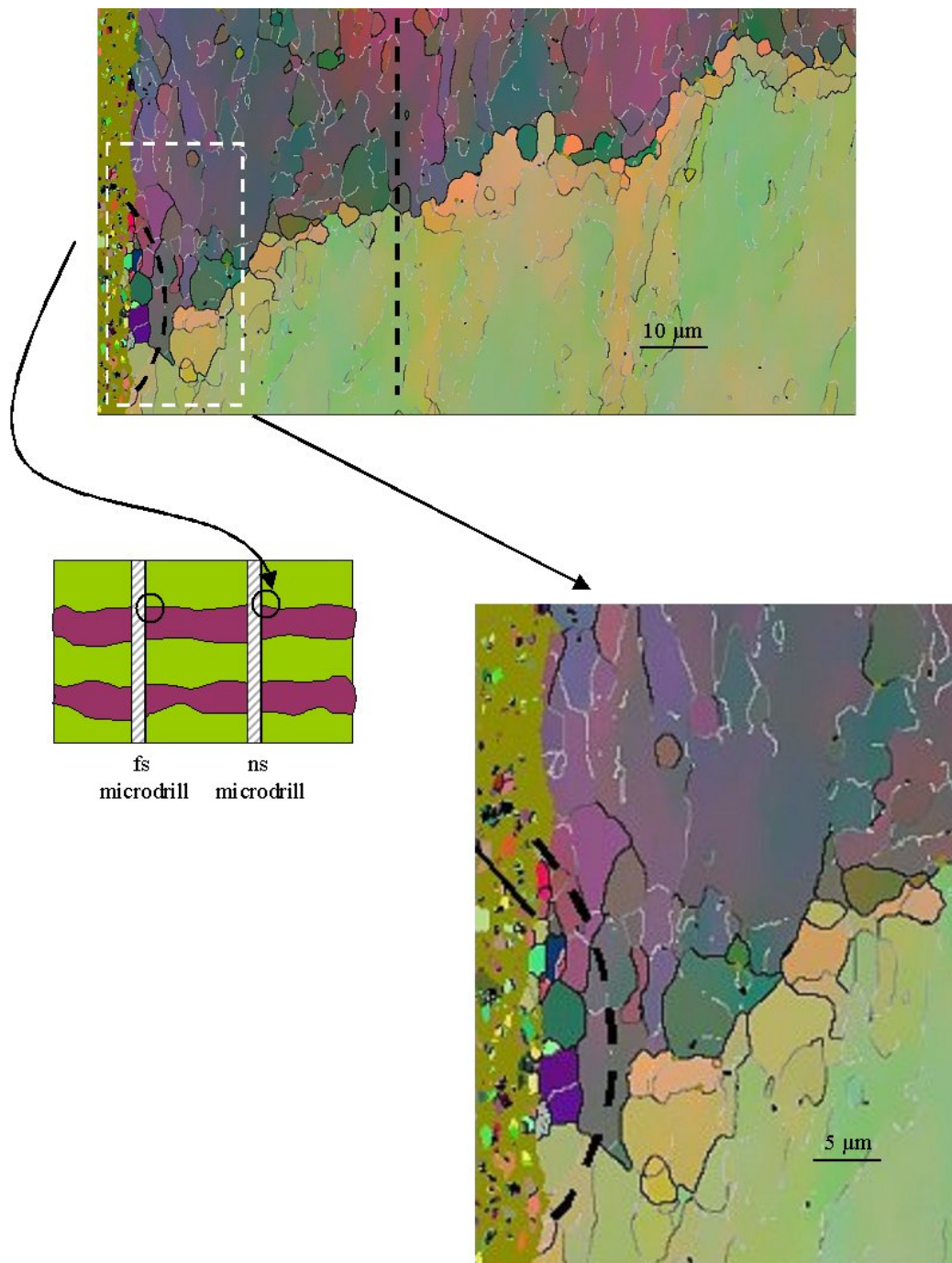


FIG. 3.24 – Cartographie sur le bord du sillon nanoseconde.

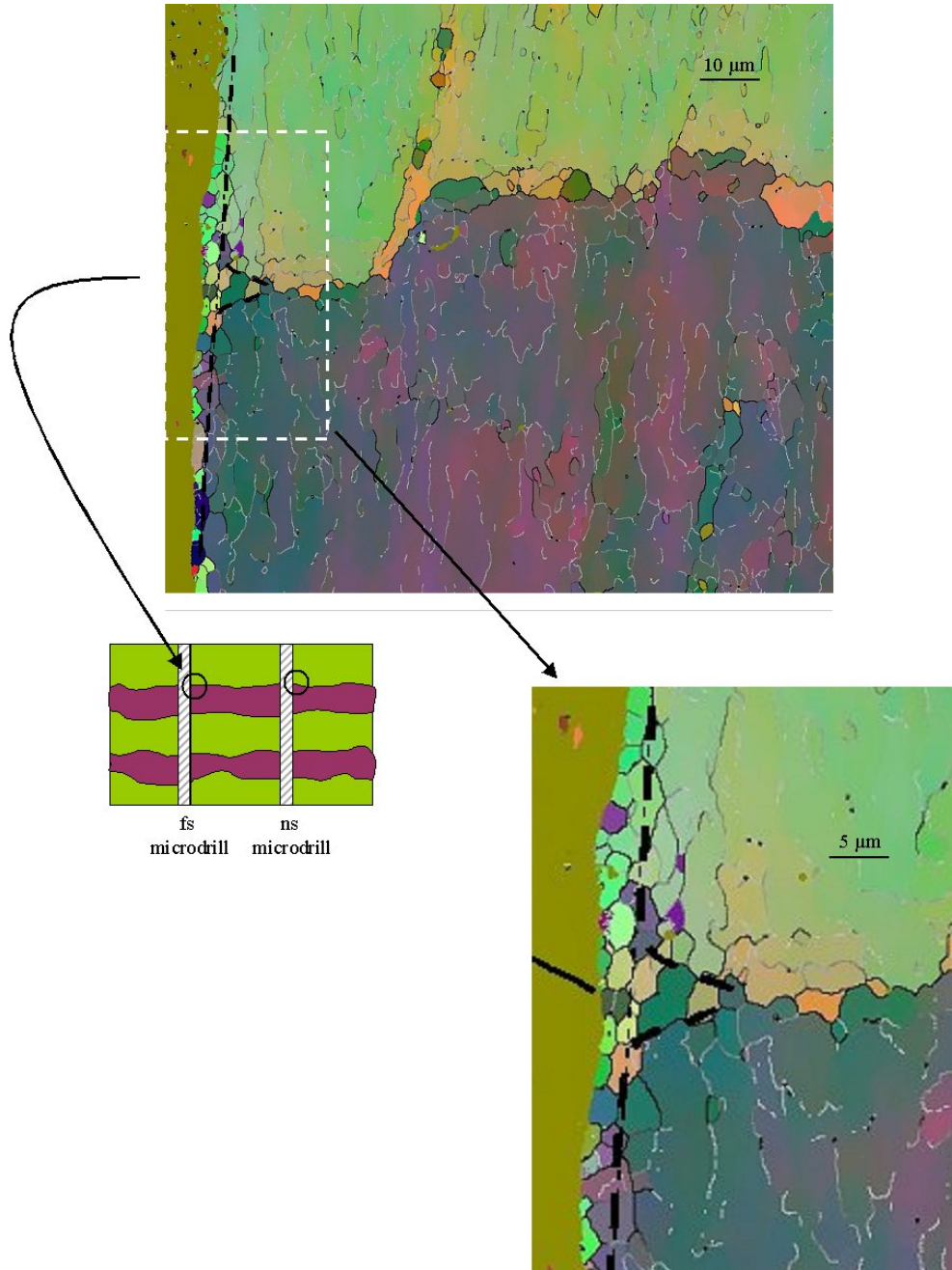


FIG. 3.25 – Cartographie réalisée sur le bord du sillon femtoseconde.

◇ Analyses

Dans les deux cas, la présence de nouvelles entités désorientées les unes par rapport aux autres est la signature d'une recristallisation. De nouveaux grains sont formés grâce à l'apport de l'énergie thermique due au laser. Les $5\mu m$ et les $2 - 3\mu m$ de ces zones respectivement pour les cas nanoseconde et femtoseconde amènent à la conclusion d'une forte similitude entre les deux régimes d'impulsion. Cependant, une étude supplémentaire précise ce premier résultat en montrant une différence claire entre les modes nanoseconde et femtoseconde.

En effet, la figure 3.26 représente l'évolution du nombre de désorientations supérieures à 10° en fonction de la distance au sillon. Il s'agit d'un moyen de mesurer la formation des sous-grains, définis comme les entités présentant des désorientations relatives supérieures à 10° . Pour chaque régime d'impulsion, l'évolution du nombre de désorientations comporte deux zones distinctes. Une première zone représentée par une décroissance du nombre de désorientations et une seconde zone représentée par une valeur constante du nombre de désorientations égale à 3.

Pour le régime femtoseconde (Figure 3.26b), la décroissance rapide du nombre de désorientations définit une première zone coupant l'axe du nombre de désorientations égal à 3 à environ $3\mu m$.

Le régime nanoseconde est plus complexe (Figure 3.26a). Dès l'origine, la pente est beaucoup plus douce et ne confond l'axe du nombre de désorientations égal à 3 que pour des abscisses de l'ordre de 30 à $40\mu m$. A l'origine, le nombre

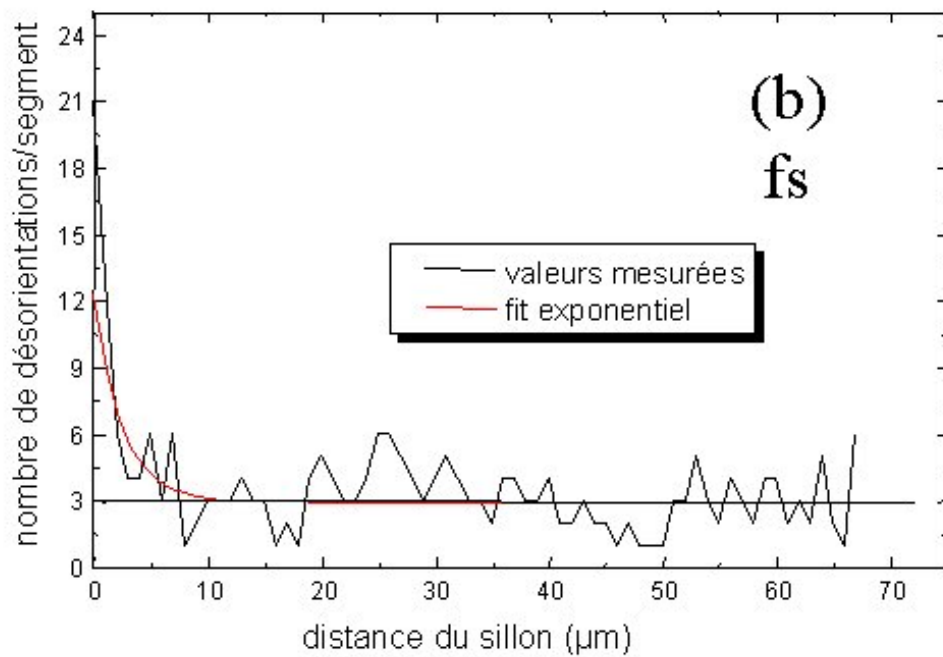
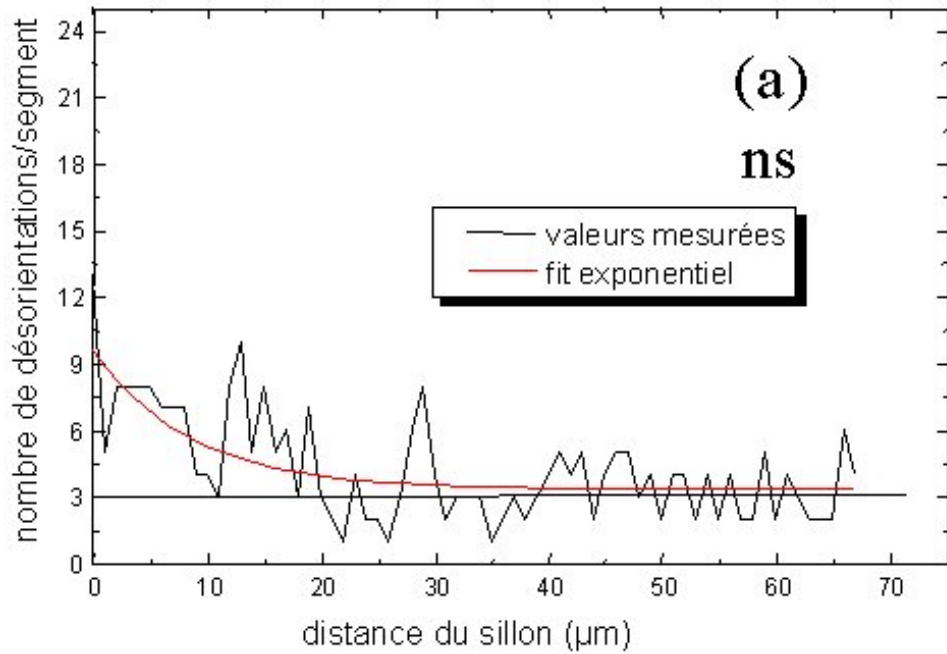


FIG. 3.26 – Désorientations supérieures à 10° en fonction de la distance au micro-sillon. (a) : mode nanoseconde. (b) : mode femtoseconde.

de sous-grains dans le cas femtoseconde est supérieur à 18, alors qu'il n'est que de 12 pour le mode nanoseconde.

Au cours du régime femtoseconde, la densité d'énergie est telle que les températures atteintes sont suffisamment élevées pour engendrer un processus de recristallisation de la structure et la formation de nouveaux grains. Le refroidissement particulièrement rapide laisse la structure en l'état et les grains ne se développent plus. Leur nombre est par conséquent plutôt élevé et leur taille réduite. Dans le cas nanoseconde, le phénomène est différent. Les températures atteintes permettent un début de recristallisation mais le refroidissement du matériau, beaucoup plus long que pour le régime femtoseconde, entraîne aussi une restauration de la microstructure. Cette étape de restauration se traduit par une diminution des défauts et la formation de sous-grains. Dans le cas présenté ici, la zone sur laquelle s'étend cette restauration est typiquement de l'ordre de 30 à 40 μm .

Pour les deux résultats présentés sur la figure 3.26, on remarque que la valeur moyenne du nombre de désorientations se stabilise autour de 3. Cette valeur représente l'échantillon qui n'a pas ressenti l'influence de l'irradiation laser. L'analyse nous oriente ainsi vers une estimation de la zone affectée thermiquement dans la direction radiale au faisceau de l'ordre de 3 μm pour le régime femtoseconde et d'environ 40 μm pour le mode nanoseconde. Il est ainsi mis en évidence une différence entre les deux régimes d'impulsion - différence dans la réponse de la matière au rayonnement laser due à deux sollicitations distinctes pour chaque régime. Une zone affectée thermiquement est mesurable à l'échelle du micromètre en mode femtoseconde. Pour le régime nanoseconde, les températures restent élevées plus longtemps et la

transformation de la microstructure peut s'effectuer sur une distance plus grande.

Afin de valider notre approche expérimentale sur la mise en évidence d'effets thermiques sur des monocristaux déformés d'aluminium, des essais de découpe avec un laser de type *YAG*, délivrant des impulsions microsecondes, ont été effectués. Les résultats sont présentés en annexe C.

Une dernière analyse est présentée dans la suite. il s'agit de l'étude de l'orientations cristalline des nouvelles structures en bord de sillon. En effet, d'après les travaux de Driver *et al.* [DRI], la recristallisation de l'aluminium initialement orienté cube et fortement déformé se fait suivant une orientation tournée de $30 - 40^\circ$ autour d'un pôle $\langle 111 \rangle$. Dans la suite sont présentées les orientations cristallines de grains en bord de sillon.

◇ Compléments

La figure 3.27 représente la figure de pôles 111 de la cartographie femtoseconde complète. On retrouve les deux orientations avec les codes de couleurs de la cartographie. L'orientation initiale cube est décomposée en deux orientations symétriques par rapport à la direction (DT) et tournées d'environ 45° .

La figure 3.28 représente le calcul des figures de pôles 111 obtenu avec le logiciel *Channel5*. Les trois résultats représentent respectivement la figure de pôles de la cartographie femtoseconde complète (Figure 3.28a), la figure de

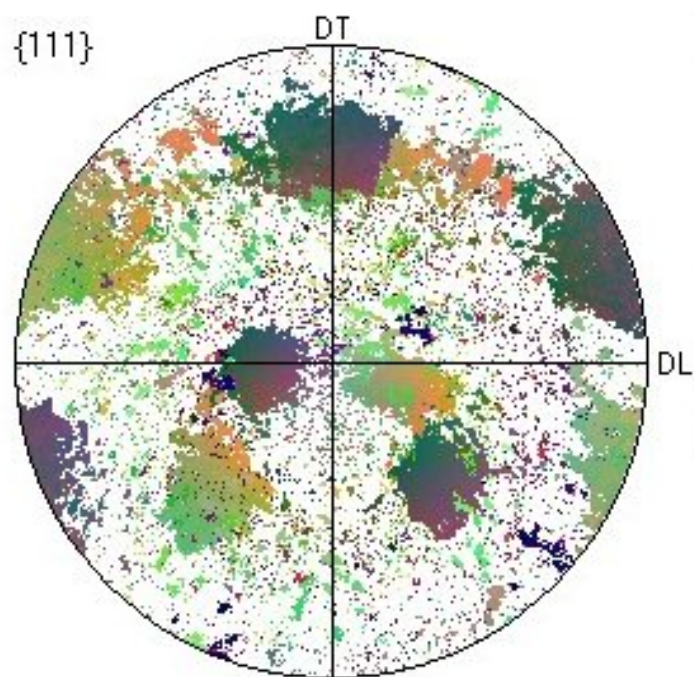


FIG. 3.27 – *Figures de pôles 111 de la cartographie femtoseconde complète.*

pôles d'un grain en bord de sillon (Figure 3.28b) et la figure de pôles d'un autre grain en bord de sillon (Figure 3.28c).

Sur la figure 3.28a, on retrouve les deux orientations caractéristiques des bandes de déformation qui représentent bien l'orientation cube séparée en deux orientations (idem figure 3.27).

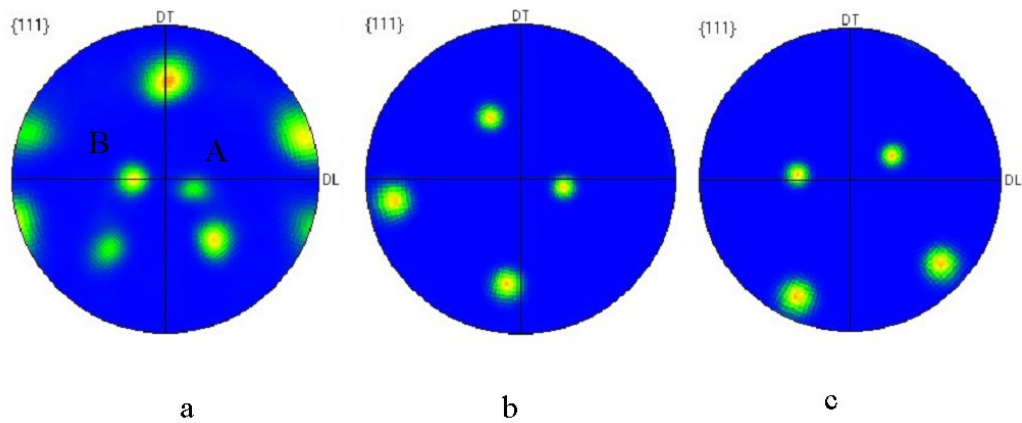


FIG. 3.28 – Calculs des figures de pôles 111. a) Cartographie femtoseconde totale. b) Grain vert en bord de sillon. c) Grain mauve en bord de sillon.

La figure 3.28b est identique à l'orientation représentant la bande de déformation *verte* sur la cartographie à une rotation près. Dans ce cas là, la rotation est d'environ 30 ° dans le sens trigonométrique autour du pôle noté A.

La figure 3.28c représente l'orientation de la bande de déformation *violette* après une rotation d'environ 40 ° dans le sens indirect autour du pôle noté B. D'après les travaux de Driver *et al.*, l'orientation des structures recristallisées dans un environnement cube fortement déformé se fait suivant une

orientation cube tournée de $30 - 40^\circ$ autour d'un pôle $\langle 111 \rangle$. Avec cette remarque, l'étude des figures de pôles de ces grains en bord de sillon fournit un argument définitif quant à la présence d'une zone thermiquement affectée en régime femtoseconde sur laquelle il y a eu recristallisation.

Ces résultats expérimentaux sont à rapprocher de l'étude récente proposée par Obara *et al.* et discutée dans la suite.

3.3.6 Conclusion

Avec les deux approches expérimentales présentées, nous avons mis en évidence l'existence d'effets thermiques en régime femtoseconde. L'analyse par MET de la première série d'essais a révélé une ZAT en régime nanoseconde de l'ordre de $35 - 40\mu m$ et a donné une limite supérieure dans le cas femtoseconde de $2\mu m$. La seconde approche utilisant l'analyse par MEB a permis d'estimer une ZAT dans le cas femtoseconde de l'ordre de $2 - 3\mu m$ et de $30 - 40\mu m$ pour le régime nanoseconde. La bibliographie ne propose que peu de résultats sur les effets thermiques en régime femtoseconde. Parmi les résultats publiés à ce jour, ceux de Obara *et al.* peuvent être comparés aux nôtres. Leurs travaux portent sur les interactions d'impulsions femtosecondes avec différents types de matériaux [OZO 03], et particulièrement sur les effets thermiques induits dans des métaux ablatés par impulsions femtosecondes [HIR 02] [HIR 03]. Leurs conditions opératoires sont proches de celles mises en place dans notre propre expérience. Leur étude porte précisément sur des échantillons épais d'or, d'argent, de cuivre et de fer. Ces auteurs réalisent des mesures de diffraction de rayonnement X et comparent les si-

gnaux émis dans la région d'ablation et dans une région non irradiée. La comparaison des pics de diffraction montre que dans la zone d'ablation les pics sont largement réduits devant ceux obtenus dans une région non irradiée. Leur analyse consiste à dire que l'ablation entraîne une fusion de la matière qui, par refroidissement rapide, se retrouve dans une phase amorphe.

Parallèlement, ils proposent une étude du taux d'ablation par tir en fonction de la fluence et retrouvent les deux régimes d'ablation déjà mis en évidence par Nolte *et al.* [NOL 97] et Furusawa *et al.* [FUR 99].

Leurs travaux mettent ainsi en évidence l'existence d'un effet thermique en régime femtoseconde mais dans la zone d'ablation. Ils ne mesurent pas l'étendue des effets thermiques en bordure de la zone irradiée. On ne peut donc pas parler de mesure de ZAT dans le cadre de leurs travaux. Par contre la présence de la phase amorphe dans la région ablatée est le signe d'un refroidissement particulièrement rapide d'un métal en fusion. Les refroidissements typiques calculés à partir de nos résultats numériques en régime femtoseconde sont de l'ordre de $10^{10}K/s$. Ces valeurs correspondent au régime d'hyper-trempe entrant dans le domaine de la fabrication des verres métalliques et fournissent une autre application de l'interaction laser-métal en régime femtoseconde. Bien que l'on puisse discuter la manière dont leurs travaux sont présentés, les résultats de ces auteurs fournissent une analyse complémentaire aux nôtres. La réponse du matériau dans la région d'ablation est différente de celle donnée en bordure de la zone irradiée. Une recherche plus approfondie sur la nature du matériau en zone irradiée apparaît très intéressante, notamment pour ce qui concerne les traitements de surface liés aux caractéristiques des verres métalliques.

Conclusion générale

Le but de cette étude était la mise en évidence et la mesure d'effets thermiques induits lors de l'interaction d'impulsions lasers femtosecondes avec des métaux.

Nous avons rappelé la dynamique de l'absorption et de la relaxation de l'énergie dans les métaux soumis à des impulsions d'une durée de l'ordre de la centaine de femtosecondes. Le modèle généralement utilisé pour traiter ce type d'interaction, connu sous le nom de Modèle à Deux Températures (MDT), a été décrit. Afin de prendre en compte les effets dans la direction perpendiculaire au faisceau, nous avons développé un traitement numérique à deux dimensions de ce modèle. Une modélisation des effets thermiques à la suite d'une impulsion nanoseconde a également été développée afin de la comparer au régime femtoseconde.

La première étape de notre travail a consisté en un traitement numérique à deux dimensions du MDT, afin de considérer les effets thermiques dans la direction perpendiculaire au faisceau. Pour résoudre le système d'équations aux dérivées partielles formant le MDT, nous avons utilisé le logiciel *free-fem+*. Ce logiciel emploie la technique des éléments finis et a été conçu pour la résolution de systèmes d'équations à deux dimensions.

Les résultats numériques obtenus ont permis de mettre en évidence l'existence d'effets thermiques en régime femtoseconde. De plus, nous avons pu comparer les régimes nanosecondes et femtosecondes. En effet des impulsions de $200fs$ et de $8ns$ ont été modélisées. L'étude de l'évolution des températures du réseau d'ions et des électrons en fonction du temps a été présentée ainsi

que celle donnant les distributions de température dans la direction du faisceau. Le résultat principal de ce travail a été la présentation de l'évolution des températures du réseau dans la direction radiale. En effet, ce dernier est directement lié à la qualité du micro-usinage. A partir de considérations de physique des matériaux, une définition de la Zone Affectée Thermiquement a été donnée. Typiquement, les ZAT en régime femtoseconde ont été calculées de l'ordre de la centaine de nanomètres. En régime nanoseconde, les valeurs calculées étaient de quelques microns. On a aussi insisté sur la comparaison des résultats entre les métaux nobles (représentés par le cuivre), les métaux de transition (représentés par le nickel) et les métaux simples (représentés par l'aluminium). Cette comparaison a mis en valeur l'importance de la constante de couplage électron-phonon en régime sub-picoseconde.

Dans le but de compléter l'approche numérique, deux montages expérimentaux ont été imaginés. Le premier a utilisé la technique de microscopie électronique en transmission. Des lames minces de 500nm d'épaisseur ont été percées par des impulsions femtosecondes (200fs) et nanosecondes (8ns). Nous avons ensuite mesuré la zone sur laquelle la microstructure présentait une évolution. Une ZAT de $40\mu\text{m}$ environ a été mise en évidence dans le cas du régime nanoseconde. Pour le régime femtoseconde, une valeur maximale de $2\mu\text{m}$ a été estimée. Cette valeur de $2\mu\text{m}$ correspond à la limite de résolution de la méthode utilisée.

La seconde expérience a utilisé la technique de microscopie électronique à balayage. Les échantillons étaient cette fois des monocristaux d'aluminium. Ces monocristaux ont été déformés en compression plane, à température am-

biente, à des valeurs de $\varepsilon \approx 2$. Ils ont ensuite été micro-usinés. Pour chaque régime d'impulsion, un sillon de quelques centaines de μm de profondeur a été réalisé. Une analyse par la méthode de diffraction des électrons rétrodiffusés (EBSD) a permis de tracer les cartographies des orientations cristallines en bordure de la découpe. Nous avons mis en évidence une zone recristallisée d'environ $2.5 - 3\mu m$ en régime femtoseconde. Le régime nanoseconde a révélé une réponse du matériau différente. En effet, une zone recristallisée de $5\mu m$ a été mise en évidence. De plus, en analysant les désorientations cristallines supérieures à 10° , une zone de restauration de $30\mu m$ environ a été mesurée. Un bon accord a donc été obtenu entre les deux études expérimentales. Un certain écart est apparu entre les résultats expérimentaux et les résultats numériques en régime nanoseconde. Cette source de désaccord devrait faire l'objet de travaux spécifiques en commençant par le nombre d'impulsions mises en jeu dans la modélisation et la température maximale atteinte par la cible.

Des effets thermiques ont donc été mis en évidence à la suite d'une interaction laser-métal en régime femtoseconde. Le modèle utilisé a permis de rendre compte des phénomènes thermiques mis en jeu à la suite de l'interaction. Les expériences mises en place ont permis de montrer expérimentalement l'existence d'une zone affectée thermiquement dans le cas de l'aluminium en régime sub-picoseconde.

En ce qui concerne le MDT, il devra être affiné sur quelques points. Les principaux concernent :

- la température maximale à considérer. En effet, la question de la température

réellement mise en jeu lors d'une expérience d'ablation dans les métaux en régime sub-picoseconde est encore fortement discutée.

- le nombre d'impulsions. Sa modélisation devrait apporter des réponses aux questions concernant le rôle de l'accumulation.

La complexité de la mise en oeuvre des caractérisations des matériaux sur ces distances faibles ne nous a pas permis de faire une étude élargie à différents métaux. Cependant, avec ces premiers résultats, deux méthodes d'analyse ont été mises en place et leur généralisation à différents types de métaux peut être envisagée. De plus, l'utilisation de ces méthodes d'analyse dans les semi-conducteurs est un point à développer. En effet, l'étude du comportement des semi-conducteurs à la suite d'une irradiation femtoseconde constitue un domaine de recherche complémentaire dont les retombées sont également très importantes. Pour les métaux, une meilleure compréhension de l'évolution des microstructures permet aujourd'hui d'envisager des études complémentaires, et une diffusion plus large du laser dans le domaine de la micro-mécanique.

Annexe A

Exemple de mise en données
pour un calcul sous Freefem+

Le logiciel Freefem+ [FRE 01] est un code d'éléments finis totalement gratuit, réalisé par des universitaires de l'université Paris VI. Il a été conçu initialement pour la résolution de systèmes d'équations aux dérivées partielles couplées. La diffusion de la chaleur est un exemple parmi tant d'autres (mécanique des fluides, acoustique, ...) où Freefem+ peut être utilisé.

Les sources du code sont accessibles en ligne mais les concepteurs du programme ont également créé un exécutable qui permet une utilisation du logiciel sans reprendre le code source. L'utilisation de Freefem+ est alors plus rapide. Cependant, freefem+ s'exécute sur un fichier préalablement écrit dans un langage dédié proche du C++. Il est donc nécessaire d'apprendre les règles de ce langage. De plus, on peut noter que Freefem+ propose une interface graphique. Celle-ci est assez rudimentaire comme souhaité par les concepteurs du programme, mais permet une représentation graphique du résultat des calculs.

Un exemple typique de fichier à exécuter est donné ci-dessous :

Définition des limites du domaine d'étude :

```
zmax :=10;
```

```
rmax :=50;
```

Construction du domaine sachant que celui-ci est défini comme tout ce qui est à gauche des frontières, lorsque celles-ci sont parcourues dans le sens trigonométrique :

```
border a1(t=0,20){x = t; y = 0};
```

border a2(t=20,rmax){x = t ; y = 0};
border b(t=0,zmax){x = rmax ; y = t};
border c1(t=rmax,20){x = t ; y = zmax};
border c2(t=20,0){x = t ; y = zmax};
border d(t=zmax,0){x = 0 ; y = t};
border e(t=0,zmax){x=20 ; y=t};

Construction du maillage :

mesh th=buildmesh(a1(1)+a2(1)+b(1)+c1(1)+c2(1)+d(1)+e(1));

Déclaration des différents paramètres du problème :

g := 56.9 * 1e - 35; Coefficient de couplage électron-phonon ($W.m^{-3}.K^{-1}$).
alpha := 133; Coefficient d'absorption optique ; ($1/alpha$) est la longueur de pénétration optique ou épaisseur de peau et vaut donc environ 7.5nm dans le cas de l'aluminium(donnée Manu Beaubau).
Ci := 2.43 * 1e - 30; Chaleur spécifique du réseau d'ions ($J.m^{-3}.K^{-1}$).
Ae := 135 * 1e - 36; Constante de chaleur spécifique des électrons ($Ce = Ae * Te$) ; ($J.m^{-3}.K^{-2}$).
F := 8.9 * 1e - 29; Fluence (mJ/cm^2).
t0 := 100; Mi-largeur à mi-hauteur de la gaussienne temporelle (fs).
K := 200 * 1e - 45; Coefficient d'échange thermique avec le milieu extérieur ($W/m^2/K$).
Text := 300; Température extérieure imposée a 300 K.
k0 := 238 * 1e - 39; Coefficient de conductivité thermique ($W/m/K$).
tt := -500; temps initial (fs).

$dt := 5$; Pas de temps.

$comp := 0$; Initialisation du compteur d'adaptation du maillage.

$wait := 0$; Fonction *freefem* : 0 => pas d'attente d'intervention utilisateur.

$femp1 \ Ti=300$; Initialisation de la température du réseau a 300 K.

$femp1 \ T'e=300*300$; Initialisation de la température électronique a 300 K.

La grandeur calculée aux noeuds est le carré de la température électronique ($T'e = Te^2$).

Boucle de calcul en fonction du temps

for $i=0$ to $1e20$ do

{

$S = F/(2/alpha) * exp(-y/(2/alpha))/(1 - exp(-zmax/(2/alpha))) * exp(-log(2) * (tt/t0)^2) * (1/(pi * t0^2))^{(1/2)} * (x < 20)$; Terme source.

$solve(T'e)$ Fonction *freefem* : résolution de l'edp.

{

$pde(T'e)T'e/dt - laplace(T'e) * k0/(Ti * Ae) - dx(T'e) * k0/(x * Ti * Ae) = 2 * S/Ae + g * 2 * Ti/Ae - g * 2 * Te/Ae + T'e/dt$; Ecriture de l'équation de diffusion de la chaleur pour le système électronique.

$on(a1, a2, b, c1, c2)dnu(T'e)*(-Ae) = K*(Te-Text); on(d, e)dnu(T'e) =$
0; **Conditions aux limites.**

}

$Ti = dt * Te * g/Ci - dt * Ti * g/Ci + Ti$; **Equation relative aux ions.**

if comp==10 then { comp :=0; femp1 T2=T'e; mesh th=adaptmesh(th,T2);
femp1 T'e=T2; femp1 Ti=Ti; } else { comp :=comp+1; } **Adaptation du**
maillage toutes les 11 itérations.

if tt==1360 then { for j=0 to 500 do **Au temps $t = 1360fs$, on demande**
les températures en fonction de z .

{

$append("aluenz_1.dat", j*zmax/500, Te(0, j*zmax/500), Ti(0, j*zmax/500));$

}

for l=0 to 1000 do **Toujours au temps $t = 1360fs$, on demande les**
températures en fonction de r .

{

```
append("aluenr1.dat", 19.2+l*3/1000, Te((19.2+l*3/1000), 0), Ti((19.2+l*3/1000), 0));
```

```
}
```

```
append("alufs1.dat", tt, Te(0, 0), Ti(0, 0)); Stockage des températures en (0;0) en fonction du temps.
```

```
tt := tt + dt; Incrément du temps.
```

```
}
```

Fin du programme.

FreeFem+ a été créé de manière à pouvoir résoudre des systèmes d'équations à deux dimensions. Le système de coordonnées par défaut est le système cartésien. Dans notre cas, la symétrie du problème impose un système de coordonnées cylindriques ; il faut donc faire les changements de variables judicieux pour passer d'un système de coordonnées à l'autre. Parmi les termes intervenant dans l'écriture de l'équation de diffusion de la chaleur associée aux électrons, les expressions du gradient et de la divergence en coordonnées cylindriques doivent prises en compte.

Nous commençons par donner le calcul en coordonnées cartésiennes :

La divergence d'un vecteur en coordonnées cartésiennes est :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{A} = \frac{\partial A_x}{\partial x} + \frac{\partial A_y}{\partial y} + \frac{\partial A_z}{\partial z}$$

Dans notre problème, avec l'expression du gradient en coordonnées cartésiennes :

$$\vec{A} = \frac{T_e}{T_l} \vec{\nabla} T_e = \begin{pmatrix} \frac{T_e}{T_l} \frac{\partial T_e}{\partial x} \\ \frac{T_e}{T_l} \frac{\partial T_e}{\partial y} \\ \frac{T_e}{T_l} \frac{\partial T_e}{\partial z} \end{pmatrix}$$

On doit donc calculer :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{A} = \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{T_e}{T_l} \frac{\partial T_e}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(\frac{T_e}{T_l} \frac{\partial T_e}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{T_e}{T_l} \frac{\partial T_e}{\partial z} \right)$$

Finalement, on obtient :

$$\begin{aligned} \vec{\nabla} \cdot \vec{A} = & \frac{T_e}{T_l} \left(\frac{\partial^2 T_e}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T_e}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 T_e}{\partial z^2} \right) + \\ & \frac{1}{T_l} \left[\left(\frac{\partial T_e}{\partial x} \right)^2 + \left(\frac{\partial T_e}{\partial y} \right)^2 + \left(\frac{\partial T_e}{\partial z} \right)^2 \right] - \\ & \frac{T_e}{T_l^2} \left[\frac{\partial T_e}{\partial x} \frac{\partial T_l}{\partial x} + \frac{\partial T_e}{\partial y} \frac{\partial T_l}{\partial y} + \frac{\partial T_e}{\partial z} \frac{\partial T_l}{\partial z} \right] \end{aligned}$$

Pour le calcul en coordonnées cylindriques, l'expression de la divergence et du gradient sont différentes.

La divergence d'un vecteur \vec{A} s'écrit :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{A} = \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} (\rho A_\rho) + \frac{1}{\rho} \frac{\partial A_\phi}{\partial \phi} + \frac{\partial A_z}{\partial z}$$

Le gradient s'écrit :

$$\vec{\nabla} = \begin{pmatrix} \frac{\partial}{\partial \rho} \\ \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \phi} \\ \frac{\partial}{\partial z} \end{pmatrix}$$

Par raison de symétrie, le terme en ϕ n'intervient pas dans notre problème.

On doit donc calculer :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{A} = \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} \left(\rho \frac{T_e}{T_l} \frac{\partial T_e}{\partial \rho} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{T_e}{T_l} \frac{\partial T_e}{\partial z} \right)$$

Ce qui donne finalement :

$$\begin{aligned} \vec{\nabla} \cdot \vec{A} = & \frac{T_e}{T_l} \left(\frac{\partial^2 T_e}{\partial \rho^2} + \frac{\partial^2 T_e}{\partial z^2} \right) + \\ & \frac{1}{T_l} \left[\left(\frac{\partial T_e}{\partial \rho} \right)^2 + \left(\frac{\partial T_e}{\partial z} \right)^2 \right] - \\ & \frac{T_e}{T_l^2} \left[\frac{\partial T_e}{\partial \rho} \frac{\partial T_l}{\partial \rho} + \frac{\partial T_e}{\partial z} \frac{\partial T_l}{\partial z} \right] + \\ & \frac{1}{\rho} \frac{T_e}{T_l} \frac{\partial T_e}{\partial \rho} \end{aligned}$$

Le terme écrit en bleu, est un terme supplémentaire dû au changement de coordonnées. Il doit être pris en compte dans l'équation relative aux électrons dans l'écriture du fichier à exécuter avec Freefem+. Dans notre cas, le terme x qui apparaît dans le fichier à exécuter représente la variable ρ du système de coordonnées cylindriques.

Annexe B

Principe de fonctionnement d'un laser déclenché

L'idée de base pour la génération d'impulsions femtosecondes est la modulation des pertes du résonateur. Le principe est de permettre une inversion de population beaucoup plus importante que nécessaire pour obtenir un effet laser en bloquant la cavité. On définit par Q le facteur de qualité comme étant le rapport de l'énergie accumulée par trajet dans la cavité sur l'énergie dissipée également par trajet :

$$Q = \frac{E_{acc.}}{E_{diss.}} \quad (\text{B.1})$$

Où $E_{acc.}$ et $E_{diss.}$ sont respectivement l'énergie accumulée par trajet et l'énergie dissipée par trajet.

La technique du déclenchement est aussi appelée "Q-switch". La figure B.1 [HIR 99] [cou99] [FON 99] donne une représentation schématique de la modulation des pertes dans la cavité :

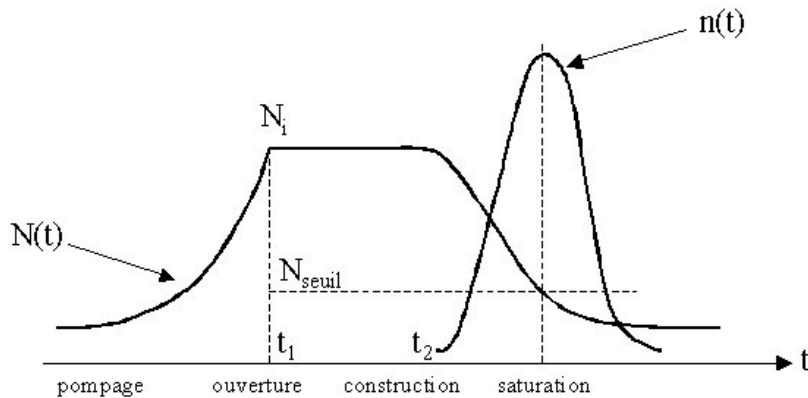


FIG. B.1 – Schéma de l'évolution au cours du temps des processus participant à la formation des impulsions lumineuses dans un laser déclenché.

Sur ce schéma sont représentés les évolutions de la valeur de l'inversion de population $N(t)$ et du nombre de photons dans la cavité $n(t)$ en fonction du temps. Au début du processus, la valeur $N(t)$ croît sans que le nombre de photons croisse car les pertes sont à leur maximum. A l'instant t_1 , l'inversion de population a atteint la valeur N_i , le pompage est supprimé et les pertes sont annulées. Le processus d'amplification par émission stimulée commence grâce aux quelques photons présents dans le bruit de la cavité. A l'instant t_2 , le nombre de photons est suffisamment grand pour que débute la saturation du gain : on a alors une chute de l'inversion de population et une croissance rapide de l'intensité dans la cavité. Lorsque l'inversion devient inférieure à la valeur seuil, l'amplification cesse, l'intensité s'effondre et une impulsion a été créée. Cette technique permet de générer des impulsions de quelques femtosecondes.

Plusieurs méthodes de blocages de cavité peuvent être utilisées. Elles sont habituellement rangées en deux catégories. D'un côté les méthodes à blocage passif (absorbant saturable, film fin), d'un autre les méthodes à blocages actif (acousto-optique, électro-optique). Dans le cas de lasers à milieu actif $Ti : Sa$, le blocage de modes est assuré par le cristal lui-même. Pour démarrer le blocage de mode, on a besoin d'introduire une perturbation dans la cavité. Ce peut être un miroir que l'on translate rapidement, ou simplement une vibration mécanique. Certains modes, parmi les milliers qui circulent dans la cavité, vont être privilégiés par rapport aux autres. C'est le processus d'auto-blocage de modes. La sélection des modes particuliers aux détriment des autres est un phénomène encore peu connu. Néanmoins, ces modes sont caractérisés par un gain élevé et sont donc plus amplifiés que les autres. On

obtient alors un pic d'intensité qui va provoquer dans le cristal un effet non linéaire connu sous le nom de lentille de Kerr. Cet effet apparaît dans tous les cristaux aux hautes intensités crêtes et rend l'indice de réfraction du cristal dépendant de la lumière qui le traverse. Les modes d'intensité élevée vont subir un phénomène d'autofocalisation et voir leur largeur spatiale diminuée. A énergie constante, la puissance crête va augmenter et la durée d'impulsion va diminuer. Le domaine des impulsions femtosecondes peut être atteint par cette technique.

Annexe C

Etude succincte des effets
thermiques d'un laser *YAG* sur
un monocristal d'aluminium

Cette étude n'entre pas dans le cadre direct de ce travail de thèse mais elle constitue une étape dans la validation de notre approche expérimentale utilisant les monocristaux d'aluminium fortement déformés.

Le laboratoire de Traitement de Surfaces de l'Ecole des Mines de Saint-Etienne dispose d'un laser YAG de 100W délivrant des impulsions de $10\mu s$ à une longueur d'onde de $1.06\mu m$. Afin de tester notre hypothèse de mise en évidence de phénomènes thermiques à la suite d'un micro-usinage laser sur des échantillons d'aluminium déformés, nous avons réalisé avec ce dispositif laser le même type d'essais que ceux décrits dans le paragraphe 3.3. La préparation de l'échantillon était identique à celle des échantillons monocristallins présentés dans le chapitre 3. Un micro-sillon a également été réalisé sur la surface d'un échantillon déformé à $\varepsilon \approx 2$. Environ 1500 passages ont été réalisés à une fréquence de $3kHz$ et une vitesse de $50mm/s$. L'usinage a été effectué au plan focal où le faisceau a un diamètre de $100\mu m$. La fluence moyenne par impulsion était donc de l'ordre de la centaine de J/cm^2 . La figure C.1 représente une photographie en microscopie optique de l'échantillon sur le bord de la découpe après polissage chimique au réactif de Keller. En effet, pour cet essai, nous nous sommes limités à une observation en microscopie optique et le polissage chimique au réactif de Keller s'est avéré amplement suffisant.

On remarque la présence de plusieurs grains dont un principal le long du sillon. Etant donné l'échelle de cette photographie, la ZAT est estimée à plus de $500\mu m$. Cette valeur est naturellement bien supérieure à celles que nous avons mises en évidence pour les régimes nanoseconde et femtoseconde. Affirmer l'existence d'effets thermiques à la suite d'une découpe par un laser

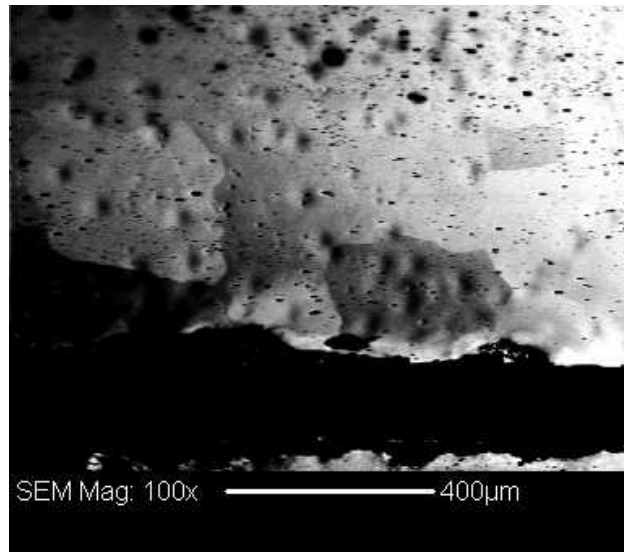


FIG. C.1 – Photographie au microscope optique d'un échantillon d'aluminium déformé et recristallisé à la suite d'un traitement au laser YAG.

YAG n'est pas en soi une grande nouveauté. Cependant, dans notre cas, ce résultat permet de valider notre hypothèse de mise en évidence d'effets thermiques avec une telle approche expérimentale. Il nous a fourni une étape de base pour la suite des expériences plus délicates en régime d'impulsions nanosecondes et femtosecondes.

Bibliographie

- [ANI 74] S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, et T. L. Perel'man. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, 66 :776–781, 1974.
- [ASH 76] N. W. Ashcroft et N. D. Mermin. *Solid state physics*. Cornell University, 1976.
- [ASH 99a] D. Ashkenasi, M. Lorenz, R. Stoian, et A. Rosenfeld. *Applied Surface Science*, 150 :101–106, 1999.
- [ASH 99b] D. Ashkenasi et A. Rosenfeld. *SPIE Proceeding*, 3618 :102–113, 1999.
- [BAS 99] F. Basson. *Déformation de l'orientation cube dans des alliages aluminium-magnésium*. Thèse, Institut National Polytechnique de Grenoble, Saint-Etienne, 1999.
- [BAS 00] F. Basson et J. H. Driver. *Acta materialia*, 48 :2101–2115, 2000.
- [BAU 02] E. Baubeau. *Etude et réalisation d'une chaîne laser femtoseconde haute cadence et de haute puissance moyenne. Applications au micro-usinage*. Thèse, Université Paris XI Orsay, Paris, 2002.
- [BER 01] J. M. Bergheau et R. Fortunier. *La méthode des éléments finis appliquée à la simulation numérique des transferts thermiques*. 2001. Cours école doctorale, Saint-Etienne.

- [BIS 00] M. Biscondi. *Défauts cristallins*. 2000. Cours Sciences et Génie des matériaux, Ecole des Mines de Saint-Etienne.
- [BOD 03] R. Bodefled, W. Theobald, J. Krüger, W. Kautek, et R. Sauerbrey. *Institut für optik und quantenelectronik, Jena, Allemagne, Communication privée*, 2003.
- [BOO 70] J. Y. Boos, B. Duquaire, F. Faure, F. Leroy, C. Ranson, et J. Rieu. *Département de métallurgie de l'école des mines de Saint-Etienne*, 1970.
- [BRO 87] S. D. Brorson, J. G. Fujimoto, et E. P. Ippen. *Physical Review Letters*, 59(17) :1962–1965, 1987.
- [CHé 96] G. Chériaux, P. Rousseau, S. Salin, J. P. Chambaret, B. Walker, et L. F. Dimauto. *Optics Letters*, 21 :414–416, 1996.
- [CHA 02] C. L. Chan. *proceedings icaleo 2002*, 2002.
- [CNR 98] CNRS. *Rapport scientifique, CNRS URA 1884*, 1998.
- [COB 89] Cobble, Kyrala, Hauer, Taylor, Gomez, Delamater, et Schappert. *Physical Review A*, 39 :454, 1989.
- [COL 03] J. P. Colombier et Combis P. *CEA, Communication privée*, 2003.
- [COR 88] P. B. Corkum, F. Brunel, N. K. Sherman, et T. Srinivasan-Rao. *Physical Review Letters*, 61(2886), 1988.
- [cou99] *Le laser Q-switch*. 1999. Cours DEA photonique et image, Strasbourg.
- [DEL 00] N. Del Fatti, C. Voisin, M. Achermann, S. Tzortzakis, D. Christofilos, et F. Vallée. *Physical Review B*, 61 :16956, 2000.
- [DRI] J. H. Driver. *Communication privée*.

- [DRI 00] J. Driver. *Génèse et contrôle des microstructures*. 2000. Cours Sciences et Génie des matériaux, Saint-Etienne.
- [ELS 87] H. E. Elsayed-Ali, T. B. Norris, M. A. Pessot, et G. A. Mourou. *Physical Review Letters*, 58(12) :1212–1215, 1987.
- [FAN 92a] W. S. Fann, R. Storz, H. W. K. Tom, et J. Bokor. *Physical Review Letters*, 68 :2834, 1992.
- [FAN 92b] W. S. Fann, R. Storz, H. W. K. Tom, et J. Bokor. *Physical Review B*, 46 :13592, 1992.
- [FON 99] J. Fontaine et C. Hirlimann. *Physique des lasers*. 1999. Cours DEA photonique et image, Strasbourg.
- [FRE 01] Freefem+. *www.freefem.org*. 2001.
- [FUR 99] K. Furusawa, K. Takahashi, H. Kumagai, K. Midorikawa, et M. Obara. *Applied Physics A*, 69 :359–366, 1999.
- [GIN 55] V. L. Ginzburg. *Dokl. Akad. Nauk. SSSR*, 100(445), 1955.
- [GRO 92] R. H. Groeneveld. *Femtosecond spectroscopy on electrons and phonons in noble metals*. Thèse, Université d’Amsterdam, 1992.
- [GUD 98] J. Gudde, J. Hohlfeld, J. G. Müller, et E. Matthias. *Applied Surface Science*, 127 :40–45, 1998.
- [HAA 96] P. Haasen. *Physical metallurgy*. Cambridge University Press, 1996.
- [HIR 99] C. Hirlimann. *Physique des lasers impulsionnels*. 1999. Cours DEA photonique et image, Strasbourg.
- [HIR 02] Y. Hirayama et M. Obara. *Applied Surface Science*, 197-198 :741–745, 2002.

- [HIR 03] Y. Hirayama et M. Obara. *Proceedings CLEO 2003, Munich*, 2003.
- [HOH 97] J. Hohlfeld, J. G. Müller, S.-S. Wellershoff, et E. Matthias. *Applied Physics B*, 64(387), 1997.
- [HOH 98] J. Hohlfeld. *Ultrafast electron-, lattice- and spin-dynamics in metals*. Thèse, Frei Universität, Berlin, 1998.
- [HOH 00] J. Hohlfeld, S.-S. Wellershoff, J. Güdde, U. Conrad, V. Jähnke, et E. Matthias. *Chemical Physics*, 215(237), 2000.
- [JEE 88] Y. Jee, M. F. Becker, et R. M. Walser. *Journal of the Optical Society of America B*, 5 :648, 1988.
- [KAG 56] M. I. Kaganov, I. M. Lifshits, et L. V. Tanatarov. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, 31(232), 1956. [Sov. Phys. -JETP 4, 173 (1957)].
- [KAG 59] M. I. Kaganov, I. M. Lifshits, et L. V. Tanatarov. *At. energ.*, 6(391), 1959.
- [KAN 98] A. P. Kanavin, I.V. Smetanin, V.A. Isakov, Yu. V. Afanasiev, B. N. Chichkov, B. Wellegehausen, S. Nolte, C. Momma, et A. Tünnermann. *Physical Review B*, 57(23), 1998.
- [KIT 69] C. Kittel. *Solid state physics*. Masson, 1969.
- [KNO 99] R. Knorren et K. H. Bennemann. *Applied Physics B*, 68 :401–404, 1999.
- [KOM 99] A. M. Komashko, M. D. Feit, A. M. Rubenchik, M. D. Perry, et P. S. Banks. 69 :95–98, 1999.
- [KOR 96] C. Korner, R. Mayerhofer, M. Hartmann, et H. W. Bergmann. *Applied Physics A*, 63 :123–131, 1996.

- [LEH 02] R. Le Harzic, N. Huot, E. Audouard, C. Jonin, P. Laporte, S. Vallette, A. Fraczkiewicz, et R. Fortunier. *Applied Physics Letters*, 80 :3886–3888, 2002.
- [LEH 03] R. Le Harzic. *Etude des procédés laser femtoseconde pour le micro-usinage à effets thermiques limités*. Thèse, Université de Saint-Etienne, Saint-Etienne, 2003.
- [LUF 96] A. Luft, U. Franz, A. Emsermann, et J. Kaspar. *Applied Physics A*, 63 :93–101, 1996.
- [MAI 60a] T. H. Maiman. *Physical Review Letters*, 4(564), 1960.
- [MAI 60b] T. H. Maiman. *Nature*, 187(493), 1960.
- [MAR 87] O. E. Martinez. *IEEE Journal of quantum electronics*, 23 :54–59, 1987.
- [MAT 94] E. Matthias, M. Reichling, J. Siegel, O. W. Käding, S. Petzoldt, H. Skurk, P. Bizenberger, et E. Neske. *Applied Physics A*, 58 :129–136, 1994.
- [MAT 99] R. Matzdorf, A. Gerlach, F. Theilmann, G. Meister, et A. Goldmann. *Applied Physics B*, 68 :393–395, 1999.
- [MAY 99] R. Maynard. *Physique statistique*. 1999. Cours Maîtrise de Physique, Grenoble.
- [MIL 88] H. M. Milchberg, R. R. Freeman, S. C. Davey, et R. M. More. *Physical Review Letters*, 61 :2364–2367, 1988.
- [MOM 96] C. Momma, B. N. Chichkov, S. Nolte, F. von Alvensleben, A. Tünnermann, H. Welling, et B. Wellegehausen. *Optics Communications*, 129 :134–142, 1996.

- [NOL 97] S. Nolte, C. Momma, H. Jacobs, A. Tünnermann, B. N. Chichkov, B. Wellegehausen, et Welling. H. *Journal of the Optical Society of America B*, 14, 1997.
- [OZO 03] K. Ozono et M. Obara. *Applied Physics A*, 77 :303–306, 2003.
- [PAL 76] Palik. *Optical constants of solids*. 1976.
- [PAN 02] G. Panasenko, M. Ahues, M. Boukrouche, A. Largillier, et L. Paoli. *Modélisation mathématique*. 2002. Cours école doctorale, Saint-Etienne.
- [PET 97] G. Petite, P. Daguzan, S. Guizar, et P. Martin. *Annales de physique, Colloque C1*, 22 :81–88, 1997.
- [PET 00] G. Petite et P. Daguzan. *L'absorption de l'énergie et ses conséquences*. Rapport CEA/DSM/DRECAM, 2000.
- [PHI 97] J. Philibert, A. Vignes, Y. Bréchet, et P. Combrade. *Métallurgie - du minerai au matériau*. Masson, 1997.
- [PIN 66] D. Pines et P. Nozières. *The theory of quantum liquids*. W. A. Benjamin, New-York, 1966.
- [PRE 94] S. Preuss, E. Matthias, et M. Stüke. *Applied Physics A*, 59 :79–82, 1994.
- [PRE 95] S. Preuss, A. Demchuk, et M. Stüke. *Applied Physics A*, 61 :33–37, 1995.
- [PRI 95] D. F. Price, R. M. More, R. S. Walling, G. Guethmein, R. L. Sheperd, R. E. Stewart, et W. E. White. *Physical Review Letters*, 75 :252–255, 1995.
- [RUF 01] A. Ruf. *Université de Stuttgart, Communication privée*, 2001.

- [Sal00] *Sciences aux temps ultracourts - De l'attoseconde aux petawatts.* Acad'emie des Sciences, 2000.
- [Sal01] *Systèmes femtosecondes.* Publications de l'Université de Saint-Etienne, 2001.
- [SCH 58] A. L. Schawlow et C. H. Townes. *Physical Review*, 112 :1940–1949, 1958.
- [SCH 87] R. W. Schoelein, W. Z. Lin, J. G. Fujimoto, et G. L. Eesley. *Physical Review Letters*, 58(16) :1680–1683, 1987.
- [SCH 02] V. Schmidt, W. Husinsky, et G. Betz. *Applied Surface Science*, 197-198 :145–155, 2002.
- [SHE 89] N. K. Sherman, F. Brunel, P. B. Corkum, et F. A. Hegmann. *Optical Engineering*, 28, 1989.
- [SPE 91] D. E. Spence, P. N. Kean, et W. Sibbett. *Optics Letters*, 16 :42–44, 1991.
- [STR 85] D. Strickland et G. Mourou. *Optics Communication*, 26 :219–221, 1985.
- [STU 96] B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, et M. D. Perry. *Journal of optical society of America B*, 13 :459, 1996.
- [SUA 95] C. Suarez, W. E. Bron, et T. Juhasz. *Physical Review Letters*, 75(24), 1995.
- [SUN 94] C. K. Sun, F. Vallée, L. H. Acioli, E. P. Ippen, et J. G. Fujimoto. *Physical Review B*, 50 :15337–15348, 1994.
- [VER 75] J.D. Verhoeven. *Fundamental of physic metallurgy.* Wiley, 1975.

- [WEL 98] S.-S. Wellershoff, J. Gdde, J. Hohfeld, J. G. Mller, et E. Matthias. *SPIE*, 3343(378), 1998.
- [WEL 99] S.-S. Wellershoff, J. Hohfeld, J. Gdde, et E. Matthias. *Applied Physics A*, 69(99), 1999.
- [ZHU 00] X. Zhu. *Applied Surface Science*, 167 :230–242, 2000.