



HAL
open science

Théorie et simulation de l'interaction des impulsions laser ultracourtes à flux modéré avec un solide métallique

Jean-Philippe Colombier

► **To cite this version:**

Jean-Philippe Colombier. Théorie et simulation de l'interaction des impulsions laser ultracourtes à flux modéré avec un solide métallique. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Jean Monnet - Saint-Etienne, 2005. Français. NNT: . tel-00011110v2

HAL Id: tel-00011110

<https://theses.hal.science/tel-00011110v2>

Submitted on 19 Dec 2005

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

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



N° d'Ordre :

Université Jean Monnet de Saint-Etienne

THÈSE

présentée pour obtenir

LE GRADE DE DOCTEUR

Spécialité : Optique

par

Jean-Philippe Colombier

THÉORIE ET SIMULATION DE L'INTERACTION DES IMPULSIONS LASER ULTRACOURTES À FLUX MODÉRÉ AVEC UN SOLIDE MÉTALLIQUE

Soutenue le 7 octobre 2005 devant la commission d'examen :

M. Eric AUDOUARD	Directeur de thèse
M. Patrick COMBIS	Examineur
M. Gérard MOUROU	Président du jury
M. Guillaume PETITE	Rapporteur
M. Marc SENTIS	Examineur
M. Christian STENZ	Rapporteur

REMERCIEMENTS

Ce sujet a émergé sous l'initiative du groupe de Procédés des Lasers Ultra-Brefs du laboratoire de Traitement du Signal et Instrumentation de Saint-Etienne dirigé par Pierre Laporte. Néanmoins, l'essentiel de cette thèse a été réalisée au Commissariat à l'Energie Atomique de Bruyères-le-Châtel, dans le département de Physique Théorique et Appliquée dirigé successivement par MM. Claude Guet et Daniel Vanderhaegen. A ce titre, je tiens à les remercier, ainsi que Françoise Simonet, responsable du service de Physique des Plasmas et Electromagnétisme, pour m'avoir accueilli dans les meilleures conditions durant ces trois années de recherche.

Je remercie tout particulièrement Patrick Combis, qui a suivi mon travail au CEA en mettant toutes ses compétences, physiques et numériques, à ma disposition pour le développement du code DELPOR. Ses commentaires avisés ont su me guider tout en me laissant l'autonomie nécessaire pour réaliser un travail personnel. Ceci démontre une grande confiance de sa part que j'ai fortement appréciée. Je suis particulièrement redevable à mon directeur de thèse Eric Audouard pour toutes les impulsions qu'il a donné à ce travail à travers ses idées, ses conseils et ses critiques avisées qui ont joué un rôle primordial dans le déroulement de cette thèse. Ses qualités humaines ont du reste permis un dialogue fructueux afin de faire converger les résultats théoriques vers des applications expérimentales.

Je remercie sincèrement les membres de mon jury, et en particulier son président M. Gérard Mourou, pour l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail. J'adresse mes profonds remerciements à M. Guillaume Petite pour l'attention qu'il a accordé à cette thèse et pour la justesse de ses corrections qui ont grandement amélioré la qualité de ce manuscrit. Je suis très reconnaissant à M. Christian Stenz pour avoir accepté d'être rapporteur de mon travail. Merci également à M. Marc Sentis d'avoir apporté son regard d'expérimentateur à la lecture de cette thèse.

Je voudrais exprimer toute ma gratitude aux personnes qui m'ont fait profiter de leur expertise. Je pense en particulier à Florian Bonneau et à Laurent Grémillet pour leur disponibilité exemplaire. Je ne remercierai jamais assez mon « co-bureau » Christophe Couillaud pour sa bonne humeur, son aide inestimable et ses encouragements quotidiens. Je remercie toutes les personnes du service PPE qui ont contribué à ce travail, souvent ou occasionnellement, ou avec qui j'ai eu tout simplement plaisir à discuter : Jean-Louis Faure, Alain Piquemal, Patrick Lacoste, Philippe Guimbal, Serge Bouquet et aussi Jérôme, Emmanuel, Laurent, Solène...

Je remercie vivement Razvan Stoian du laboratoire TSI pour ses avis très précieux, mais également l'ensemble de l'équipe PLUB pour son accueil et pour les discussions que j'ai pu échanger avec, entre autres, Nicolas Huot, Florence Garrelie, Christophe Donnet, François Rogemond, Christelle Pareige, Ronan, Stéphane, Nicolas et Alexandre.

Enfin, je ne saurais terminé ces remerciements sans exprimer toute ma reconnaissance à ceux qui m'ont soutenu tout au long de ce parcours : ma famille et mes amis.

Table des matières

Introduction et contexte général	1
I Simulation de l'interaction laser-matière hors d'équilibre	7
1 Dépôt d'énergie électromagnétique	11
1.1 Equation de Helmholtz	12
1.2 Expression générale du champ électrique	14
1.2.1 Champ incident, réfléchi et transmis	15
1.2.2 Forme générale du champ total	16
2 Découplage thermique électron-réseau	19
2.1 Le cristal métallique, un plasma dégénéré	20
2.1.1 Thermalisation du gaz d'électrons	20
2.1.2 Modèle à Deux Températures	22
2.1.3 Résolution numérique des équations	23
2.2 Définition des paramètres énergétiques	26
2.2.1 Capacité calorifique électronique	26
2.2.2 Conductivité thermique électronique	30
2.2.3 Coefficient de couplage thermique électron-réseau	34
2.3 Etablissement de la distribution spatiale énergétique	37
2.3.1 Profil de dépôt d'énergie	37
2.3.2 Le processus de relaxation	39
3 Equation d'état du réseau cristallin	41
3.1 Les équations d'état disponibles	42
3.1.1 Les équations SESAME	42
3.1.2 Le modèle de More - QEOS	42

3.1.3	Equations d'état de Bushman-Lomonosov-Fortov (BLF)	43
3.2	Détail du modèle de l'EOS multi-phase	44
3.2.1	Contribution de la courbe froide	44
3.2.2	Contribution thermique du réseau cristallin	46
3.2.3	Contribution thermique du gaz d'électron	48
3.3	Exemples et utilisations des EOS	49
3.3.1	Equation d'état de l'Aluminium	49
3.3.2	Equation d'état du cuivre	50
3.3.3	Détermination des quantités dérivées	51
4	Les processus hydrodynamiques	53
4.1	La dynamique Lagrangienne	54
4.1.1	Les équations d'Euler	54
4.1.2	Le choix d'une approche Lagrangienne	56
4.1.3	Ecriture sous la forme Lagrangienne	56
4.2	Détermination de la pression électronique	57
4.2.1	Pression quantique à température nulle	58
4.2.2	Pression électronique	59
4.2.3	Découplage des pressions	61
4.3	Propriétés des ondes de choc	64
4.3.1	L'onde de compression	64
4.3.2	L'onde de détente	65
4.3.3	Comportement élastoplastique : Modèle de Steinberg-Cochran-Guinan	67
4.3.4	Détail des chocs engendrés dans la cible	68
4.4	Perspectives : mesure de pression interne dans la cible	71
5	Détermination de l'ablation de matière	75
5.1	Originalité des applications des sources ultrabrèves	76
5.2	Méthodes et résultats expérimentaux	78
5.2.1	Procédés expérimentaux	78
5.2.2	Obtention d'un taux d'ablation	80
5.3	Mécanismes et critères de l'éjection de matière	82
5.3.1	Les multiples possibilités d'éjection	82
5.3.2	Description de la transition solide-plasma	84
5.3.3	Phénoménologie de la transition liquide-gaz proche du point critique	86
5.3.4	Fragmentation et écaillage	90
5.4	Détermination théorique du taux d'ablation	93
5.4.1	Critère utilisé	93
5.4.2	Dépendance en fluence de la profondeur ablatée	94
5.4.3	Influence des coefficients du modèle	97

II	Evolution ultrarapide des propriétés optiques	105
6	Description dynamique des états électroniques	109
6.1	Equation d'onde de Bloch - Structure de bandes	110
6.2	Réponse au champ électromagnétique - Conductivité électrique	112
6.3	Prise en compte des collisions	114
6.3.1	Règle d'or de Fermi	114
6.3.2	Règle de Matthiessen	115
6.4	Influence du chauffage électronique sur la fréquence de collisions	116
6.4.1	Potentiel de Thomas-Fermi	116
6.4.2	Les collisions électron-électron	117
6.4.3	Les collisions électron-phonon	119
7	Modélisation des propriétés optiques	121
7.1	Fréquence de collisions électron-électron	122
7.1.1	Collisions électroniques dans le réseau cristallin	122
7.1.2	Collisions électroniques dans un plasma	124
7.1.3	Interpolation entre les deux régimes	126
7.2	Absorption optique intrabande	128
7.3	Cas de l'aluminium	130
7.3.1	Contribution interbande entre bandes parallèles	130
7.3.2	Le modèle de Ashcroft et Sturm	133
7.4	Mise en évidence de l'effet des collisions interbandes sur l'absorption	138
8	Application à l'interprétation de résultats expérimentaux	143
8.1	Réflectivité optique d'un métal	144
8.1.1	Dépendances typiques de la réflectivité	144
8.1.2	Restitution des expériences	147
8.2	Expériences non résolues en temps	148
8.2.1	Dépendance angulaire de l'effet de la polarisation	148
8.2.2	Dépendance en intensité de la réflectivité	150
8.3	Observation temporelle de la dynamique ultrarapide	152
8.3.1	Evolution temporelle des propriétés optiques	153
8.3.2	Application de l'ellipsométrie au sondage de l'état de matière	155
9	Application à la mise en forme temporelle d'impulsions ultracourtes	159
9.1	Effet d'une double-impulsion sur l'absorption optique et l'ablation	160
9.1.1	Introduction d'un décalage temporel entre deux impulsions	160

9.1.2	Cas de deux impulsions d'intensité différente	163
9.1.3	Cas de deux impulsions de même intensité	167
9.2	Mise en œuvre expérimentale	171
9.2.1	Mise en forme programmable par valve optique	171
9.2.2	Mise en forme programmable par optique diffractive	174
 Conclusion générale et perspectives		181
 A Résolution analytique de l'équation de Helmholtz		185
A.1	Formulation analytique	185
A.2	Raccordement à l'impulsion incidente	187
A.3	Dépôt d'énergie dans le milieu absorbant	189
 B Calculs préliminaires d'un faisceau laser focalisé		193
B.1	Position du problème	193
B.2	Expression bidimensionnelle du champ électromagnétique	195
B.3	Méthode numérique de propagation - Schéma de Yee	197
 C Organigramme du code Delpor		201
 Bibliographie		203

Abbréviations

DELPOR	Dépôt d'Energie Lagrangien dans un matériau POREux
(Q)EOS	(Quotidian) Equation of State
BLF	Bushman - Lomonosov - Fortov
$e-e$, $e-ph$, $e-i$	électron-électron ($e-e$), électron-phonon ($e-ph$) et électron-ion ($e-i$)

Constantes physiques

ϵ_0, μ_0	Permittivité diélectrique (ϵ_0) et perméabilité magnétique (μ_0) du vide
c	Vitesse de la lumière
k_B	Constante de Boltzmann
m_e	Masse de l'électron
a_0	Paramètre de maille
\hbar	Constante de Planck

Indices

\tilde{X}, X^*	X variable complexe, X^* conjugué de la variable X
X_0, X^0	Valeur dans le vide (X_0) ou aux conditions initiales (X^0)
$X_{i,r,t}$	Composante incidente (i), réfléchi (r), transmise (t)
$X^{p,s}$	Composante polarisée \parallel (p) ou \perp (s) au plan d'incidence
X_n^k	Indices de discrétisation spatiale (n) et temporelle (k)
$X_{e,i,c}$	Contribution électronique (e), ionique (i) et froide à 0K (c)
X_C	Coordonnée du point critique dans un diagramme de phase
$X_{E,I}$	Grandeur Extérieure (E) ou Intérieure (I) d'une cellule
$X_{e-e,e-ph}$	Contributions électron-électron ($e-e$) et électron-phonon ($e-ph$)
$X_{n,\vec{k}}$	Indices de bandes de Bloch
$X_{D,F}$	Grandeurs caractéristiques de Debye (D) et Fermi (F)
$X_{DH,DB,TF}$	Grandeurs caractéristiques de Debye-Hückel (DH), De-Broglie (DB) et Thomas-Fermi (TF)
$X_{IB,d}$	Contributions interbande (IB) et de Drude (d)
$X^{(S),(P)}$	Domaine solide (S) et plasma (P)

Symboles

\vec{r}, x, y, z, t	Position (\vec{r}), coordonnées radiales (x,y) et longitudinale (z), temps (t)
ρ, ϕ, z	Système de coordonnées cylindriques (<i>Annexe B</i>)
$\Delta t, \Delta z$	Pas de temps (Δt) et d'espace (Δz)
\mathcal{J}, \mathcal{F}	Fonction thermodynamique grand potentiel (\mathcal{J}) et énergie libre (\mathcal{F})
\mathcal{E}, \mathcal{H}	Champs électrique (\mathcal{E}) et magnétique (\mathcal{H})
\mathcal{D}, \mathcal{B}	Déplacement électrique (\mathcal{D}) et induction magnétique (\mathcal{B})
$\vec{V}(\phi, \vec{A})$	Quadrivecteur potentiel électromagnétique
ρ_{e-}, j	Densité volumique de charge (ρ_{e-}), courant électrique (j)
ω_0, ω_p	Pulsation laser (ω_0) et pulsation plasma (ω_p)
λ, τ_L	Longueur d'onde (λ) et durée (τ_L) de l'impulsion laser
$\tilde{\sigma}, \tilde{\rho}$	Conductivité électrique ($\tilde{\sigma}$) et résistivité électrique ($\tilde{\rho}$)
\vec{k}, \vec{q}	Vecteurs d'onde électromagnétique (\vec{k}) et acoustique (\vec{q})

$\tilde{\epsilon}, \tilde{n}$	Permittivité diélectrique ($\tilde{\epsilon}$) et indice optique (\tilde{n}) du milieu
δ	Epaisseur de peau
ϑ, ϕ	Angle d'incidence (ϑ) et phase (ϕ) de l'onde électromagnétique
F, F_{Th}, I	Fluence laser (F), Fluence seuil d'ablation (F_{Th}), Intensité (I)
$r^{s,p}, t^{s,p}$	Réflectivité (r) et transmittivité (t) des champs
\mathcal{R}, \mathcal{T}	Réflectivité ($\mathcal{R} = r^2$) et transmittivité ($\mathcal{T} = t^2$) en intensité
Π, \mathcal{P}	Puissance dissipée par unité de surface (Π) et de volume (\mathcal{P})
$\tilde{\alpha}, \tilde{K}$	Intermédiaires de calcul Helmholtz
ρ, S	Densité massique (ρ), entropie du système (S)
$T_{e,i}$	Températures électronique (e) et ionique (i)
$P_{e,i,c}$	Pression électronique (e), ionique (i), froide (c)
P_{Tot}, P	Pression totale (Tot) et à l'équilibre (P)
V, \mathcal{V}	Volume (V) et volume spécifique ($\mathcal{V} = 1/\rho$) d'une cellule
$\varepsilon_{e,i}, E$	Energie interne spécifique électronique (e), ionique (i), à l'équilibre (E)
$C_{e,i}$	Capacités calorifiques volumiques électronique (e) et ionique (i)
$K_{e,i}$	Conductivités thermiques électronique (e) et ionique (i)
j_T	Flux de transfert thermique électron-ion
γ	Facteur de couplage électron-phonon
D	Dépôt d'énergie instantané
S	Surface de contact entre deux cellules du maillage
$T_{Fus,vap}$	Températures de fusion (Fus) et de vaporisation (vap)
E_{sub}	Chaleur latente de sublimation
\vec{u}, c_S	Vitesse d'une cellule (\vec{u}) et vitesse du son (c_S)
\mathcal{S}, \mathcal{D}	Tenseur des déformations (\mathcal{S}), et déformation plastique (\mathcal{D})
$\Sigma, \mathcal{G}, \mathcal{Y}$	Contrainte interne (Σ), Modules de cisaillement (\mathcal{G}) et d'élasticité (\mathcal{Y})
\mathcal{T}	Taux d'ablation
m_e^\dagger	Masse optique de l'électron
\vec{v}	Vitesse moyenne de la distribution d'électrons
N_e, \mathcal{N}_e	Densité électronique (N_e) et nombre d'électrons (\mathcal{N}_e)
U_e	Densité volumique d'énergie interne électronique
\mathcal{E}, μ	Energie du gaz d'électrons et potentiel chimique (μ)
$n(\mathcal{E})$	Densité d'états à l'énergie \mathcal{E}
$f(\mathcal{E}, T_e)$	Fonction de distribution énergétique, statistique de Fermi-Dirac
$N(u)$	Distribution statistique de Bose-Einstein d'un phonon d'énergie u
Z^*	Degré d'ionisation moyen
N_c	Densité critique électronique
τ, ν	Temps entre deux collisions (τ) et fréquence de collisions (ν)
\vec{p}	Vecteur impulsion
\vec{K}	Vecteur du réseau réciproque
ψ	Fonction d'onde de Bloch
Ω	Volume de la sphère de Fermi
\vec{J}	Vecteur densité de courant
φ	Potentiel d'écrantage
Δ	Pourcentage de processus Umklapp

Introduction et contexte général

La maîtrise des effets engendrés par les impulsions ultrabrèves sur les solides nécessite une compréhension complète des mécanismes de l'interaction. L'enjeu est aujourd'hui de reproduire le déroulement d'un scénario ultrarapide aussi fugitif que les montres de Salvador Dalí. Lors d'une excitation lumineuse délivrée par un laser intense, les propriétés intrinsèques d'un matériau solide évoluent de manière atypique. Quelques dizaines de femtosecondes suffisent au système microscopique pour réagir à l'énergie transportée par les photons. Celle-ci est redistribuée successivement sur les électrons puis sur les ions du réseau cristallin, conduisant alors la matière dans un état instable. Sous l'effet de ce fort déséquilibre, une fulgurante transformation s'organise pour que le système relaxe et c'est ce point précis que nous allons aborder dans ce travail. Sur une échelle de temps subpicoseconde associée à la durée de l'impulsion laser, l'immobilité relative des ions ordonnés en réseau confère à l'assemblage une trompeuse apparence de stabilité. Néanmoins, nous exposerons de quelle manière la rapide mise en mouvement des électrons insufflé une dynamique puissante de destruction du matériau.

T. Maiman a montré en 1960 qu'un barreau de rubis excité, placé dans une cavité pour produire une rétroaction optique permettait d'obtenir un faisceau intense de lumière laser. Quatre années seulement ont suffi à Hargrove *et al* [58] pour obtenir des impulsions subnanosecondes, grâce à la technique dite du blocage de mode de la cavité laser. La durée des impulsions a ensuite été abaissée et a atteint quelques femtosecondes dans les années 1980 grâce à l'apparition du CPM (Colliding Pulse Mode-locked dye laser) [44]. A cette période, différentes technologies d'amplification ont émergé mais n'étaient alors pas applicables au domaine femtoseconde. En effet, cette baisse de durée d'impulsion occasionne une augmentation de la puissance crête des impulsions laser, pouvant atteindre une centaine de GW dans certaines conditions, ce qui endommageait les milieux amplificateurs. Une méthode spécifique a dû être développée par Strickland et Mourou en 1985 baptisée « amplification à dérive de fréquence » et consistant à

étirer, amplifier puis recomprimer les impulsions [144]. La voie a alors été ouverte aux lasers de puissance ultracourts et des éclaircissements de 10^{21} W cm⁻² sont aujourd'hui atteints.

Sur une échelle de temps allant de quelques femtosecondes jusqu'à quelques picosecondes, les systèmes atomiques et les molécules oscillent librement. Cette période correspond au temps nécessaire à un système microscopique pour commencer à réagir à la sollicitation appliquée. Ainsi, les réactions chimiques, les transitions de phase et les taux de collisions ont des échelles de temps comparables à celle-ci. L'avancée des technologies dites ultracourtes rend possible l'observation directe ou indirecte de cette dynamique. En particulier, les lasers ultrabrefs, d'une durée typique inférieure à une picoseconde permettent d'envoyer des flashes de lumière cohérente pour approfondir notre connaissance de la mise en mouvement microscopique. Cette technologie a servi la chimie et s'est vue récompensée par un prix Nobel attribué à A. H. Zewail en 1999 pour ses travaux concernant l'utilisation des lasers à modes bloqués afin de mesurer la dynamique de dissociation des molécules et des réactions chimiques complexes.

La physique du solide bénéficie également de ces avancées puisque les mouvements du réseau cristallin ainsi que la dynamique électronique peuvent être sondés au moyen de la technologie femtoseconde toute adaptée. Cette dernière autorise en outre l'étude des transitions de phase aux limites cinétiques. Aux plus fortes intensités, un plasma est créé qui peut à son tour produire des impulsions ultracourtes de rayonnement X mou cohérent, et permet d'explorer la structure de la matière sur de très petites échelles en sondant les modifications atomiques induites. Des températures électroniques de l'ordre du keV ont été observées à 10^{15} W cm⁻², induisant une émission X dans un spectre à la fois continu, en raison du Bremsstrahlung, et discret, dû aux raies d'émission associées à la recombinaison après ionisation du plasma. L'interaction à plus forte intensité permet également d'accéder à des états de matière qui n'étaient alors accessibles que par explosions nucléaires. Des pressions supérieures à la centaine de GPa sont effectivement rencontrées dans les expériences d'interaction laser à haut flux et constituent une formidable opportunité pour la compréhension des phénomènes rencontrés en astrophysiques et pour de futures expériences de fusion par confinement inertiel. En augmentant encore l'intensité, des électrons suprathermiques s'échappent du plasma et entraînent des protons et des ions résultant de l'accélération engendrée par la force de charge d'espace auto-induite.

Nous nous intéressons ici aux impulsions de faible énergie, de quelques microjoules, de telle sorte que les intensités étudiées se situent dans la gamme 10^{12} - 10^{15} W cm⁻², pour une durée d'environ 150 fs. Avec ces caractéristiques, le faisceau laser opère une destruction presque instantanée, limitée spatialement à la tache focale de quelques μm^2 . Dans ce flux d'énergie, qualifié de *modéré* ou d'*intermédiaire* par rapport aux intensités maximales accessibles, les propriétés sont réunies pour faire de ce système optique un excellent outil de mécanique. La matière est en effet arrachée du milieu d'origine avec une très grande précision, ce qui confère à ce régime d'in-

tensité des qualités indéniables pour des applications industrielles. De multiples activités sont en effet intéressées par les propriétés originales de ce type de laser qui permet de microstructurer la matière en surface, ou en profondeur dans le cas des diélectriques. Diverses applications telles que l'ablation, la découpe, la soudure ou le marquage des métaux s'avèrent ainsi intimement liées aux procédés découlant des impulsions ultracourtes.

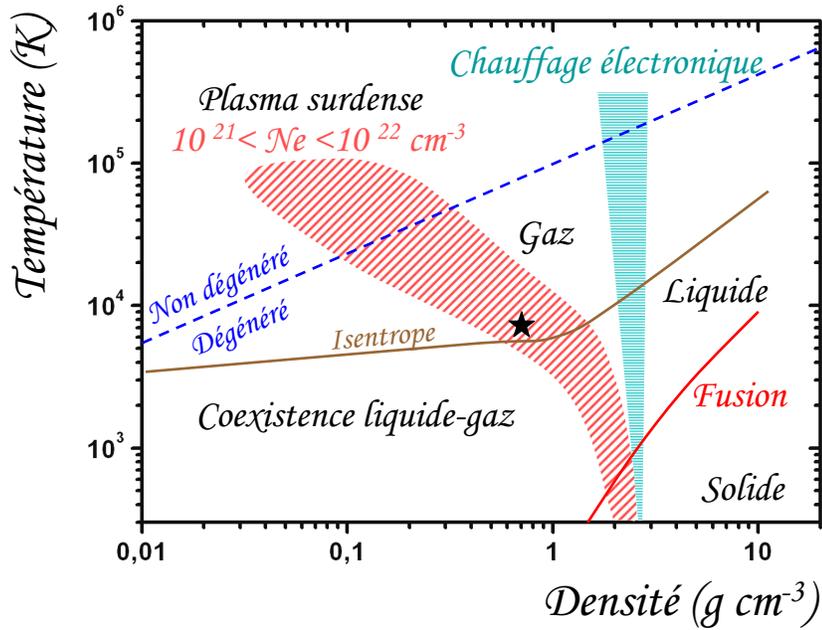


FIG. 1 – Diagramme de densité-température montrant la répartition des domaines étudiés dans ce travail, dans l'exemple de l'aluminium, inspiré de Celliers et Ng [24]. Le domaine d'existence de chacune des quatre phases considérées est présenté sur la figure ainsi que les états thermodynamiques atteints par le gaz d'électrons durant l'interaction avec l'impulsion ultracourte (en hachures horizontales), et ceux atteints par la matière à la suite de l'impulsion (hachures diagonales). Cette dernière région correspond au cas où la fréquence plasma est égale aux fréquences optiques visibles. Le point critique est indiqué par une étoile sur la figure.

La rapidité avec laquelle la matière est portée à haute température l'empêche de se détendre et permet ainsi l'obtention de plasma surdense. Nous avons représenté sur la figure (1) le domaine atteint par la matière dans un diagramme densité-température. Les électrons sont chauffés de manière isochore et restent dégénérés à haute densité. Le plasma créé dans les instants suivants l'impulsion conserve une population électronique de densité supérieure à la densité critique ($N_c \simeq 2 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ dans notre cas). Les propriétés de transport de la matière chaude et dense restent assez méconnues; quant à celles d'un solide en déséquilibre thermique, elles sont sujettes à de multiples discussions. Ce type d'interaction est ainsi une occasion unique de faire le lien entre la physique des solides et la physique des plasmas. L'étude de la transition entre ces

deux disciplines pourrait bien fournir les limites asymptotiques nécessaires à la compréhension d'ensemble des deux problématiques.

Des états thermodynamiques extrêmes sont également atteints par les ions du cristal. Les changements de phase sont effectivement franchis par des chemins thermodynamiques exotiques, avec une cinétique extrêmement rapide. Notons également que les études sur le comportement du matériau au voisinage du point critique se multiplient. Ceci a conduit divers laboratoires à opter pour une analyse microscopique de la dynamique du système. Des études de dynamique moléculaire, comprenant plusieurs milliers d'atomes, ont ainsi émergé pour reproduire la perte de cohésion d'un système sous l'effet d'une augmentation ultracourte de l'énergie électronique. Pour notre part, comme pour beaucoup d'autres études sur le sujet, nous nous sommes limités à une description de type fluide, maintenant l'unité du système en moyennant les propriétés macroscopiques sur des éléments de fluide infinitésimaux. Elle est sans doute plus appropriée pour donner une vue d'ensemble de l'interaction mais elle reste somme toute limitée pour apporter de nouvelles informations sur des comportements microscopiques singuliers.

Nous avons scindé ce document en deux parties principales, en soulignant que le tout premier chapitre se révèle être une courte introduction commune aux deux parties. Nous avons choisi d'adopter une approche inductive dans la première partie, donnant une vue d'ensemble de la simulation de l'interaction laser-matière hors d'équilibre. Cette approche facilitera la compréhension du déroulement des processus engendrés et permettra une confrontation aux faits expérimentaux. Au contraire, la seconde partie est présentée plutôt sous une forme déductive où chaque chapitre s'alimente des résultats précédents. Elle traite de l'évolution ultrarapide des propriétés optiques en exposant le fond théorique, puis des modèles adaptés à notre cas, suivis de quelques applications expérimentales.

Nous commençons notre étude par la description des champs électromagnétiques à une dimension, telle qu'elle est écrite dans le code DELPOR. Ceci est l'objet du *chapitre 1*, assorti de l'*annexe A* où le calcul de dépôt d'énergie est développé et l'*annexe B* dans laquelle nous exposons une ébauche de résolution à deux dimensions. Ce premier chapitre fournira les expressions de l'énergie électromagnétique absorbée, assurant la déposition de l'énergie sur les électrons. Alors s'amorce le déséquilibre électron-ion que nous formulerons dans le *chapitre 2*, explicitant le découplage thermique au moyen du modèle à deux températures. La description du gaz d'électrons bénéficiera à ce titre d'une attention particulière et nous formaliserons son équation d'état. Dans ce contexte, il s'avère pertinent de présenter les modèles empiriques de l'équation d'état matière multiphasique, sur laquelle s'articulent les propriétés thermodynamiques de notre système. Explicitée dans le *chapitre 3*, nous en discuterons la teneur pour pouvoir prudemment comparer les diverses études rencontrées dans la littérature. Le *chapitre 4* est consacré à la mise sous contrainte hors d'équilibre du matériau. Nous exploiterons les modèles et les données hydrodynamiques pour expliquer et explorer la formation et la propagation des chocs dans le

milieu. Enfin, l'usage conjoint de ces descriptions nous permettra de reproduire numériquement la transition solide-plasma et nous dégagerons, au cours du *chapitre 5*, des critères pour estimer la quantité de matière ablatée. Nous détaillerons également les procédés expérimentaux utilisés à cette fin et nous aurons alors l'opportunité de confronter nos simulations à ces résultats d'expériences.

Après une étude récapitulative de la description électronique grâce à une introduction des bandes d'énergie dans le solide, nous exprimerons les dépendances des différentes fréquences de collisions au cours du *chapitre 6*. Il sera pour nous l'occasion de fixer les bases indispensables à la compréhension des mécanismes d'absorption. Ceux-ci seront examinés au début du *chapitre 7*, dans lequel les contributions des transitions intrabande et interbande seront proposées afin de dépasser le contexte des électrons libres. Nous introduirons alors une expression de l'effet du déséquilibre sur les propriétés optiques en établissant un modèle-enveloppe incorporant les théories solide et plasma acceptées. Muni de cette évolution des indices optiques hors d'équilibre, le code DELPOR se verra être un outil numérique adapté pour reproduire des expériences de la littérature. Le *chapitre 8* sera ainsi consacré à la présentation et à l'interprétation des résultats d'expériences résolues, ou non, temporellement. Enfin, au cours du *chapitre 9*, nous proposerons une application directe de ces modèles en nous appuyant sur les méthodes expérimentales de mise en forme temporelle de faisceau. Ce dernier chapitre clôturera notre étude et permettra sans doute d'optimiser et de fournir une interprétation théorique à de futures élaborations d'expériences.

Première partie

Simulation de l'interaction laser-matière hors d'équilibre

Au delà d'une simple modélisation des processus fondamentaux associés aux effets d'une impulsion ultracourte, les simulations ouvrent de larges champs d'application. Le développement et l'utilisation d'un code de simulation permettent de tisser un lien privilégié entre les hypothèses théoriques et les observations expérimentales. Une préoccupation commune unit ces deux approches : repousser les limites fixées par la complexité des mécanismes physiques liés à l'interaction.

Dans cette première partie, nous allons présenter les modèles décrivant chacun des processus mis en jeu. L'autonomie apparente de chacun de ces modèles ne doit pas cacher leur complémentarité puisque le code articule chacun d'eux à chaque pas de temps lors de la simulation effective de l'interaction. Leur importance respective évolue ensuite au cours de la progression de la simulation.

Les modèles utilisés sont enfin une donnée essentielle pour décrypter les résultats fournis par le code. En effet, l'analyse de l'évolution spatiale et temporelle des propriétés considérées nécessite une interprétation appropriée, nuancée par le type d'hypothèses effectuées. Une comparaison avec des résultats d'expériences dédiées sera présentée à la fin de cette partie et sera l'occasion de faire le point entre les moyens mis en œuvre et les résultats obtenus.

Henri Poincaré, La Science et l'Hypothèse (1902)

Dans l'histoire du développement de la physique, on distingue deux tendances inverses. D'une part, on découvre à chaque instant des liens nouveaux entre des objets qui semblaient devoir rester à jamais séparés [...]. La science marche vers l'unité et la simplicité. D'autre part, l'observation nous révèle tous les jours des phénomènes nouveaux [...] et la science paraît marcher vers la variété et la complication.

De ces deux tendances inverses, qui semblent triompher tour à tour, laquelle l'emportera ? Si c'est la première, la science est possible ; mais rien ne le prouve a priori, et l'on peut craindre qu'après avoir fait de vains efforts pour plier la nature malgré elle à notre idéal d'unité, débordés par le flot toujours montant de nos nouvelles richesses, nous ne devions renoncer à les classer, abandonner notre idéal, et réduire la science à l'enregistrement d'innombrables recettes.

Dépôt d'énergie électromagnétique

Pour effectuer une étude de l'interaction laser-matière, le premier problème auquel la simulation doit se confronter est la détermination précise de l'énergie électromagnétique absorbée. Pour cela, il faut connaître la valeur du champ électromagnétique à la surface de l'échantillon. Ainsi, nous avons été amenés à appliquer les équations de Maxwell au problème de la propagation de champs monochromatiques dans un milieu conducteur, métal ou plasma. Les indices du matériau évoluant au cours de l'interaction sous l'effet de l'augmentation progressive d'énergie dans le métal, il faut traiter le cas de l'équation de propagation des champs dans un milieu inhomogène. Il n'existe pas de solution évidente dans ce cas et sa résolution requiert plusieurs hypothèses sur la forme des champs ainsi qu'un traitement numérique adapté. C'est le but de ce premier chapitre, essentiel pour une connaissance rigoureuse du profil d'énergie dans le matériau.

La résolution des équations de Maxwell, sous l'hypothèse de Helmholtz, est effectuée dans le code DELPOR de manière semi-analytique. Le milieu inhomogène a en effet été découpé en cellules pourvues chacune de propriétés homogènes dans lesquelles il est possible d'exprimer le champ électromagnétique de manière analytique. Le traitement numérique permet alors de vérifier les relations de continuité à chacune des interfaces, dans le milieu ainsi que sur les bords du domaine d'intégration.

Dans un premier temps, nous allons définir les grandeurs associées à la description des champs électromagnétiques dans le métal. Nous montrerons comment il est possible de se restreindre à l'équation de Helmholtz pour s'affranchir de la dépendance temporelle des champs. Dans un deuxième temps, nous verrons comment il est possible d'intégrer numériquement cette équation au moyen d'une résolution semi-analytique dans un empilement de maille. Enfin nous expliciterons l'énergie déposée dans une maille et nous concluerons sur les relations utilisées entre l'énergie du laser incident, l'énergie réfléchie, l'énergie déposée et l'énergie transmise.

Nous allons tout d'abord donner les expressions des champs électromagnétiques et de leur propagation par l'intermédiaire des équations de Maxwell. Nous les simplifierons en les exprimant sous la forme de la relation de Helmholtz. L'écriture des champs que nous allons définir dans cette partie peuvent être retrouvés dans la majorité des ouvrages d'optiques [17, 19]. Les résultats concernant la résolution de l'équation de Helmholtz présentés en annexe sont plus originaux mais n'apportent pas d'informations supplémentaires à la compréhension de ce travail.

1.1 Equation de Helmholtz

Nous considérons la propagation d'un champ harmonique, de fréquence ω_0 dans un milieu métallique caractérisé par une permittivité diélectrique relative ϵ_r indépendante de la fréquence et par une conductivité électrique complexe $\tilde{\sigma}$. Nous supposons le matériau dépourvu de propriétés magnétiques et nous prendrons la perméabilité magnétique égale à celle du vide μ_0 .

Les équations de Maxwell en régime harmonique décrivent l'évolution des champs électriques $\vec{\mathcal{E}}$ et magnétiques $\vec{\mathcal{B}}$ dans le milieu :

$$\begin{cases} \overrightarrow{rot} \vec{\mathcal{E}} = -\frac{\partial \vec{\mathcal{B}}}{\partial t} & \overrightarrow{rot} \vec{\mathcal{B}} = \frac{\epsilon_r}{c^2} \frac{\partial \vec{\mathcal{E}}}{\partial t} + \mu_0 \vec{j} \\ \text{div} \vec{\mathcal{E}} = -\frac{\rho_e}{\epsilon_0} & \text{div} \vec{\mathcal{B}} = 0 \end{cases} \quad (1.1)$$

Les électrons libres et les ions libres dans le cas d'un plasma sont les principaux acteurs de la conductivité puisqu'ils sont mis en mouvement par le champ électrique appliqué¹, créant ainsi un courant macroscopique libre. Ce courant noté \vec{j} suit la loi d'Ohm qui s'écrit en notation complexe :

$$\vec{j} = \tilde{\sigma}(z) \vec{\mathcal{E}} = [\sigma_1(z) - i\sigma_2(z)] \vec{\mathcal{E}}, \quad \text{avec } \sigma_1(z) \geq 0 \text{ et } \sigma_2(z) \geq 0$$

L'hypothèse de monochromaticité de l'onde et le modèle monodimensionnel nous permettent de simplifier les équations sous la forme :

$$\begin{cases} \overrightarrow{rot} \vec{\mathcal{E}} = -\frac{\partial \vec{\mathcal{B}}}{\partial t} = -i\omega_0 \vec{\mathcal{B}} \\ \overrightarrow{rot} \vec{\mathcal{B}} = \frac{\epsilon_r}{c^2} \frac{\partial \vec{\mathcal{E}}}{\partial t} + \mu_0 \vec{j} = \left[\mu_0 \tilde{\sigma}(z) + i\frac{\omega_0 \epsilon_r(z)}{c^2} \right] \vec{\mathcal{E}} \equiv \tilde{\alpha}(z) \vec{\mathcal{E}} \end{cases} \quad (1.2)$$

En utilisant les relations d'analyse vectorielle, nous aboutissons à l'équation vectorielle de Helmholtz :

$$\begin{aligned} \overrightarrow{rot} \overrightarrow{rot} \vec{\mathcal{E}} &= (\overrightarrow{grad} \text{div} - \overrightarrow{\Delta}) \vec{\mathcal{E}} = -i\omega_0 \tilde{\alpha}(z) \vec{\mathcal{E}} \\ &= \tilde{K}^2(z) \vec{\mathcal{E}} \end{aligned} \quad (1.3)$$

¹A l'inverse, les ions du métal et les électrons liés sont fixes et sont ainsi responsables des propriétés diélectriques en raison de leur polarisabilité.

où le paramètre $\tilde{K}(z)$ est relié à la permittivité complexe du milieu ϵ , à la conductivité électrique complexe $\tilde{\sigma}$ et à l'indice complexe \tilde{n} par les relations suivantes :

$$\begin{cases} \tilde{K}^2(z) = k_0^2 \tilde{\epsilon}(z) \text{ avec } \tilde{\epsilon}(z) = \epsilon_1(z) - i\epsilon_2(z) = \left[\epsilon_r(z) - \frac{\sigma_2(z)}{\omega_0 \epsilon_0} \right] - i \frac{\sigma_1(z)}{\omega_0 \epsilon_0} \\ \tilde{K}(z) = k_0 \tilde{n}(z) \text{ avec } \tilde{n}(z) = \sqrt{\tilde{\epsilon}(z)} = \eta(z) - i\kappa(z) \end{cases}$$

Nous pouvons alors en déduire les relations entre les permittivités et les indices optiques :

$$\begin{cases} \epsilon_1(z) = \eta^2 - \kappa^2 \\ \epsilon_2(z) = 2 \eta \kappa \end{cases}$$

ϵ_1 , η , κ sont des réels positifs, la partie réelle de \tilde{k} est aussi positive mais sa partie imaginaire est négative.

Les codes Lagrangiens monodimensionnels plans tels que DELPOR sont caractérisés par un empilement de mailles d'épaisseur variable. A l'intérieur de chacune de ces mailles, les propriétés sont homogènes, fixant ainsi localement les valeurs de $\tilde{\sigma}$, $\tilde{\alpha}$ et \tilde{K} (cf figure A.1). Par raison de symétrie, les champs sont indépendants de la variable y dans ce milieu stratifié. D'après (1.2), nous pouvons voir que le champ électrique est à flux conservatif :

$$\begin{aligned} \operatorname{div}(\tilde{\alpha} \vec{\mathcal{E}}) &= \tilde{\alpha} \operatorname{div}(\vec{\mathcal{E}}) = \operatorname{div}(\overrightarrow{\operatorname{rot}} \vec{\mathcal{B}}) = 0 \\ \Rightarrow \operatorname{div}(\vec{\mathcal{E}}) &= \frac{\partial \mathcal{E}_x}{\partial x} + \frac{\partial \mathcal{E}_z}{\partial z} = 0 \end{aligned} \quad (1.4)$$

Il convient de remarquer l'indépendance des polarisations p et s imposés par la relation précédente. En effet, la polarisation p dans le plan xOz , constituée par les composantes \mathcal{E}_x et \mathcal{E}_z , évolue indépendamment de la polarisation s suivant l'axe Oy constituée par la composante \mathcal{E}_y . La relation (1.4) nous permet d'exprimer l'équation de Helmholtz (1.3) sous la forme simplifiée suivante :

$$\vec{\Delta} + \tilde{K}^2 \vec{\mathcal{E}} = \begin{pmatrix} \frac{\partial^2 \mathcal{E}_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{E}_x}{\partial z^2} + \tilde{K}^2 \mathcal{E}_x \\ \frac{\partial^2 \mathcal{E}_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{E}_y}{\partial z^2} + \tilde{K}^2 \mathcal{E}_y \\ \frac{\partial^2 \mathcal{E}_z}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{E}_z}{\partial z^2} + \tilde{K}^2 \mathcal{E}_z \end{pmatrix} = 0 \quad (1.5)$$

Il faut garder à l'esprit le fait que le milieu entier reste inhomogène et il se pose le problème de la présence de discontinuité plane entre deux milieux de caractéristiques différentes. Les champs électriques et magnétiques doivent vérifier les relations de continuité aux interfaces entre deux mailles de paramètre \tilde{K} distincts.

La continuité des composantes tangentielles des champs électrique et magnétique impose à \mathcal{E}_x , \mathcal{E}_y et \mathcal{B}_x , \mathcal{B}_y d'être continus à l'interface. La relation (1.2) entraîne quant à elle, associée à la continuité de \mathcal{B}_x et \mathcal{B}_y , les relations de passage suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \mathcal{E}_y}{\partial z} \text{ continu} \\ \frac{\partial \mathcal{E}_x}{\partial z} - \frac{\partial \mathcal{E}_z}{\partial x} \text{ continu} \end{array} \right. \quad (1.6)$$

L'ensemble de ces conditions doivent être vérifiées pour, d'une part, les composantes \mathcal{E}_x et \mathcal{E}_z et d'autre part pour la composante \mathcal{E}_y . Les relations couplées s'écrivent :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial^2 \mathcal{E}_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{E}_x}{\partial z^2} + \tilde{K}^2 \mathcal{E}_x = 0 \quad (\text{relation de Helmholtz}) \\ \frac{\partial^2 \mathcal{E}_z}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{E}_z}{\partial z^2} + \tilde{K}^2 \mathcal{E}_z = 0 \quad (\text{relation de Helmholtz}) \\ \frac{\partial \mathcal{E}_x}{\partial x} + \frac{\partial \mathcal{E}_z}{\partial z} = 0 \quad (\text{div } \vec{\mathcal{E}} = 0) \\ \mathcal{E}_x \text{ continu et } \frac{\partial \mathcal{E}_x}{\partial z} - \frac{\partial \mathcal{E}_z}{\partial x} \text{ continu} \end{array} \right. \quad (1.7)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial^2 \mathcal{E}_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{E}_y}{\partial z^2} + \tilde{K}^2 \mathcal{E}_y = 0 \quad (\text{relation de Helmholtz}) \\ \mathcal{E}_y \text{ continu et } \frac{\partial \mathcal{E}_y}{\partial z} \text{ continu} \end{array} \right. \quad (1.8)$$

L'ensemble des équations nécessaires à notre étude ont ainsi été développées. Nous allons maintenant expliciter la forme du champ électrique que nous avons introduit pour obtenir une solution du système d'équation considéré.

1.2 Expression générale du champ électrique

Dans notre modèle à une dimension, le faisceau laser incident est supposé posséder une extension transverse infinie. Le champ électrique s'exprime sous la forme d'une onde plane monochromatique. Nous noterons ϑ l'angle formé par le faisceau incident et la normale à la surface du milieu. Par projection, nous allons exprimer chacune des composantes du champ telles que nous les avons schématisé sur la figure (1.1) suivante.

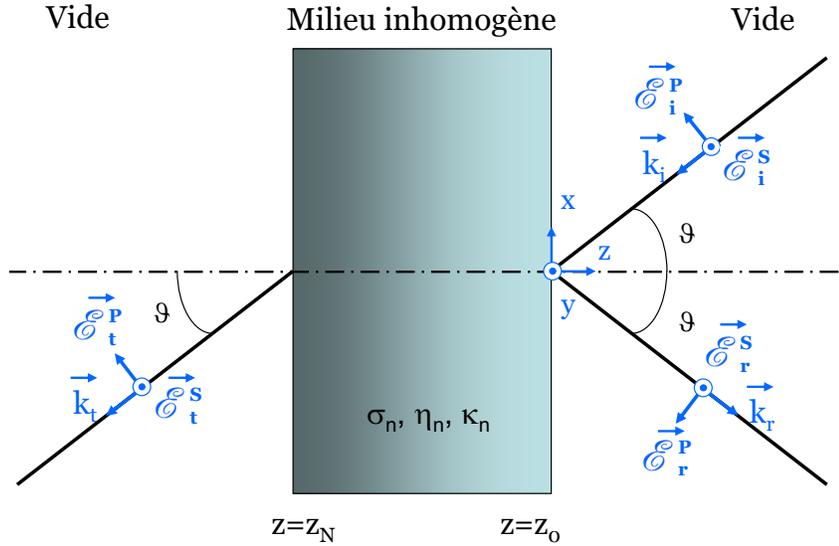


FIG. 1.1 – Schéma des champs électriques incident, réfléchi et transmis.

1.2.1 Champ incident, réfléchi et transmis

Dans le repère cartésien orthonormé $Oxyz$, l'expression vectorielle du champ électrique incident, en fonction du vecteur d'onde k_0 dans le vide, s'écrit :

$$\vec{\mathcal{E}}_i = \begin{pmatrix} \mathcal{E}_i^p \cos \vartheta \exp [i(\omega_0 t - \vec{k}_i \cdot \vec{r} + \phi_i^p)] \\ \mathcal{E}_i^s \exp [i(\omega_0 t - \vec{k}_i \cdot \vec{r} + \phi_i^s)] \\ - \mathcal{E}_i^p \sin \vartheta \exp [i(\omega_0 t - \vec{k}_i \cdot \vec{r} + \phi_i^p)] \end{pmatrix} \quad (1.9)$$

En développant le terme de phase par projection sur les axes considérés, nous obtenons :

$$\vec{\mathcal{E}}_i = \begin{pmatrix} \mathcal{E}_i^p \cos \vartheta \exp [i(\omega_0 t + k_0 x \sin \vartheta + k_0 z \cos \vartheta + \phi_i^p)] \\ \mathcal{E}_i^s \exp [i(\omega_0 t + \vec{k}_0 x \sin \vartheta + k_0 z \cos \vartheta + \phi_i^s)] \\ - \mathcal{E}_i^p \sin \vartheta \exp [i(\omega_0 t + k_0 x \sin \vartheta + k_0 z \cos \vartheta + \phi_i^p)] \end{pmatrix} \quad (1.10)$$

De manière identique, le champ réfléchi prend la forme :

$$\vec{\mathcal{E}}_r = \begin{pmatrix} - \mathcal{E}_r^p \cos \vartheta \exp [i(\omega_0 t + k_0 x \sin \vartheta - k_0 z \cos \vartheta + \phi_r^p)] \\ \mathcal{E}_r^s \exp [i(\omega_0 t + k_0 x \sin \vartheta - k_0 z \cos \vartheta + \phi_r^s)] \\ - \mathcal{E}_r^p \sin \vartheta \exp [i(\omega_0 t + k_0 x \sin \vartheta - k_0 z \cos \vartheta + \phi_r^p)] \end{pmatrix} \quad (1.11)$$

Enfin, le champ transmis se note :

$$\vec{\mathcal{E}}_t = \begin{pmatrix} \mathcal{E}_t^p \cos \vartheta \exp [i(\omega_0 t + k_0 x \sin \vartheta + k_0 z \cos \vartheta + \phi_t^p)] \\ \mathcal{E}_t^s \exp [i(\omega_0 t + k_0 x \sin \vartheta + k_0 z \cos \vartheta + \phi_t^s)] \\ - \mathcal{E}_t^p \sin \vartheta \exp [i(\omega_0 t + k_0 x \sin \vartheta + k_0 z \cos \vartheta + \phi_t^p)] \end{pmatrix} \quad (1.12)$$

Nous avons attribué une phase à chaque type de polarisation pour tenir compte du fait que les ondes sont polarisées elliptiquement. Dans le cas particulier où ces phases sont identiques pour les composantes s et p , la polarisation est rectiligne.

1.2.2 Forme générale du champ total

Le milieu étant modélisé par un empilement monodimensionnel dans la direction Oz , la dépendance en fonction de la variable x des champs électriques dans le milieu doit être identique à la dépendance en x des champs externes dans le vide de manière à assurer la continuité des champs aux interfaces quelle que soit la valeur de x . Il existe donc les fonctions $\mathcal{E}_x^0(z)$, $\mathcal{E}_y^0(z)$ et $\mathcal{E}_z^0(z)$ telles que nous ayons, dans chacune des mailles :

$$\begin{cases} \mathcal{E}_x(x, z) = \mathcal{E}_x^0(z) \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \\ \mathcal{E}_y(x, z) = \mathcal{E}_y^0(z) \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \\ \mathcal{E}_z(x, z) = \mathcal{E}_z^0(z) \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \end{cases} \quad (1.13)$$

D'où nous en déduisons par injection dans les relations de Helmholtz et en posant le vecteur d'onde généralisé \tilde{k} tel que $\tilde{k}^2 = \tilde{K}^2 - (k_0 \sin \vartheta)^2$:

$$\frac{\partial^2 \mathcal{E}_x^0}{\partial z^2} + \tilde{k}^2 \mathcal{E}_x^0 = 0, \quad \frac{\partial^2 \mathcal{E}_y^0}{\partial z^2} + \tilde{k}^2 \mathcal{E}_y^0 = 0, \quad \frac{\partial^2 \mathcal{E}_z^0}{\partial z^2} + \tilde{k}^2 \mathcal{E}_z^0 = 0$$

Les solutions de ce type d'équation différentielle se composent de deux termes propagatifs se propageant en sens inverse. En remplaçant celles-ci dans le système d'équation (1.13), nous obtenons la forme générale du champ électrique :

$$\begin{cases} \mathcal{E}_x(x, z) = \left[a \exp(i\tilde{k}z) + b \exp(-i\tilde{k}z) \right] \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \\ \mathcal{E}_y(x, z) = \left[c \exp(i\tilde{k}z) + d \exp(-i\tilde{k}z) \right] \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \\ \mathcal{E}_z(x, z) = -\frac{k_0 \sin \vartheta}{\tilde{k}} \left[a \exp(i\tilde{k}z) - b \exp(-i\tilde{k}z) \right] \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \end{cases} \quad (1.14)$$

où a, b, c, d sont des constantes complexes qu'il faut déterminer. Celles-ci s'obtiennent en appliquant les relations sur les conditions aux limites du système ainsi que les relations de continuité aux interfaces de chaque maille. La résolution étant quelque peu fastidieuse, nous ne la développerons pas dans ce chapitre mais nous l'avons détaillée dans l'*annexe A*. Elle permet d'obtenir la puissance dissipée par unité de volume au moyen de la loi de Joule-Lenz, qui correspond à l'énergie déposée dans le milieu. Pour illustrer ce point, nous avons reporté sur la figure (1.2)

l'énergie normalisée à l'énergie maximale de l'impulsion incidente en fonction du temps pour les impulsions incidente, réfléchi, absorbée et transmise. Elles ont été obtenues par résolution de l'équation de Helmholtz dans un film d'aluminium de 20 nm d'épaisseur lors de l'irradiation par une impulsion de 5 J cm^{-2} . Nous pouvons noter que la fluence est intégrée sur l'enveloppe de la gaussienne temporelle utilisée et que le milieu est doté d'indices variant sur l'épaisseur de peau et dans le temps.

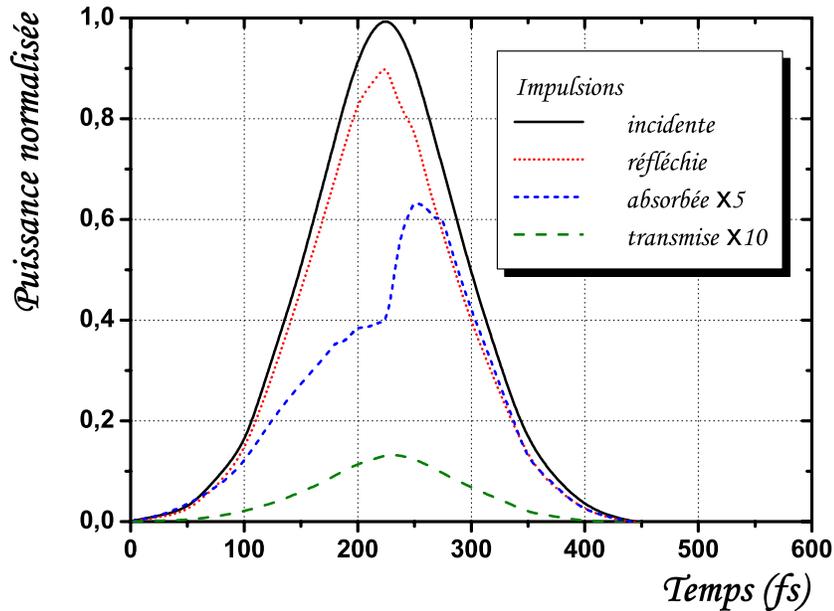


FIG. 1.2 – Evolution temporelle des puissances normalisées contenues dans les champs électriques incident, réfléchi, absorbé et transmis dans le cas d'une cible mince (20 nm) d'aluminium pour une impulsion gaussienne de longueur d'onde $\lambda = 800 \text{ nm}$ et de durée $\tau_L = 150 \text{ fs}$ (FWHM).

Au terme de ce premier chapitre consacré à la définition des propriétés électromagnétiques et aux calculs des champs électriques, nous avons développé l'expression d'un champ laser dans une géométrie monodimensionnelle. L'énergie déposée dans le métal par l'impulsion laser est ainsi estimée avec précision, en tenant compte de l'inhomogénéité par l'intermédiaire de la variation des indices optiques. Les calculs d'absorption optique sont effectués durant l'impulsion laser, lorsqu'elle est unique mais aussi lorsqu'elle est dédoublée ou qu'elle est assortie d'une sonde comme nous le verrons dans la seconde partie. Nous avons également essayé de donner une expression bidimensionnelle des champs pour reproduire la géométrie du faisceau laser. Nous n'utiliserons pas leur expression dans la suite de ce document, par conséquent nous avons placé cette étude en annexe également (*Annexe B*).

Découplage thermique électron-réseau

L'ensemble des impulsions laser que nous étudions dans ce travail ont la particularité d'être absorbées par le cristal alors que le solide reste froid. En effet, le transfert d'énergie entre les photons incidents et les atomes cibles s'effectue par l'intermédiaire des électrons. Ils sont responsables de l'absorption et de la redistribution de l'énergie au réseau. Les processus de collisions entre particules gouvernent cette redistribution sur un temps de l'ordre de quelques picosecondes. Dans le cas d'impulsions ultracourtes inférieures à ce temps de relaxation, le comportement dynamique des électrons doit être pris en compte.

Dans ce régime dynamique, les interactions entre particules sont dominantes et ce sont elles qui régissent la propagation et le transfert d'énergie d'une population à une autre. Une attention toute particulière doit donc leur être accordée et elles ont d'ailleurs fait l'objet de multiples expériences, modèles théoriques et interprétations au cours de ces quinze dernières années. Le modèle que nous allons présenter ne se contente pas seulement de gérer la dynamique du système puisqu'il se règle également sur les données expérimentales disponibles en intégrant celles-ci dans ses paramètres.

Dans ce second chapitre, nous allons tout d'abord exposer les observations et les hypothèses qui, au fil des années, ont fait émerger l'idée d'une interaction dominée par la dynamique du gaz d'électrons dans le cristal. Par ce biais, nous présenterons le modèle de diffusion de l'énergie au sein du métal qui découle naturellement de ce déséquilibre thermique électron-ion et nous verrons la manière dont nous avons effectué la résolution. Ensuite, en explicitant les propriétés thermodynamiques du système d'électrons à travers une statistique de Fermi-Dirac, nous définirons les paramètres associés au modèle à deux températures. Il est cependant difficile de dissocier les aspects thermiques des aspects hydrodynamiques. Ces derniers feront l'objet du *chapitre 4* et nous ne développerons ici que partiellement la dépendance en densité pour nous limiter aux résultats relatifs à la montée en température du matériau.

2.1 Le cristal métallique, un plasma dégénéré

Consécutivement à l'excitation des électrons libres d'un métal par bremsstrahlung inverse, une minorité d'électrons proches de l'énergie de Fermi, se trouvent promus à une énergie plus élevée, égale à l'énergie d'un photon incident. Plusieurs étapes successives de relaxation de ce surplus d'énergie sont alors initiées. La première permet de répartir l'énergie électromagnétique sur l'ensemble des électrons libres du cristal par collisions électron-électron ($e-e$). Une première thermalisation interne est alors atteinte lorsqu'il devient possible de définir une température locale au gaz d'électrons, nécessitant une dizaine de collisions. Sur leur parcours, ces électrons rencontrent également des phonons, qui sont des quasi-particules associées aux modes de vibration du réseau cristallin. Le champ coulombien s'exerçant entre l'électron et l'ion, modélisé comme fixe, permet aux deux particules d'interagir par absorption et émission de phonon. La relaxation par collisions électron-phonon ($e-ph$) constitue la seconde étape rencontrée par le système pour retrouver son équilibre. L'énergie cinétique des électrons est transférée au réseau cristallin sous la forme de quanta de vibration. Ce transfert thermique, explicité dans la suite, est pris en compte à travers le modèle à deux températures.

2.1.1 Thermalisation du gaz d'électrons

Le mécanisme de diffusion interne électronique est un processus à deux corps, impliquant deux électrons libres qui interagissent par interaction électrostatique. L'énergie totale du système électronique ainsi que le nombre de porteurs restent inchangés sous l'effet de ces collisions. Des électrons secondaires sont alors créés qui subissent eux aussi une série de collisions et ainsi de suite jusqu'à la relaxation complète de l'énergie. Diverses expériences ont été menées pour visualiser ce déséquilibre dans les premiers instants, tendant à prouver que son influence prend effet durant les premières centaines de femtosecondes.

En 1987, des mesures de réflectivité transitoire, à la suite d'une impulsion laser de 65 fs, réalisées par Schoenlein *et al* ont montré qu'une distribution d'électrons en déséquilibre dans l'or pouvait être obtenue au cours de la première picoseconde [130]. Plus tard, des expériences de photoémission effectuées par Fann *et al* ont démontré qu'il y avait un temps de relaxation fini pour que les électrons se trouvent distribués suivant une statistique de Fermi-Dirac [40]. Sun *et al* ont réussi, en 1994, à déduire d'expériences de réflectivité que le temps de relaxation était de l'ordre de 500 femtosecondes dans le gaz d'électrons [147]. Puis, en 1996, des études de photoémission à deux photons résolues en temps¹, ont été élaborées par Hertel *et al* sur des échantillons de cuivre [61]. L'utilisation d'impulsions laser de 60 femtosecondes ont fait apparaître que le temps mis par la distribution électronique pour atteindre l'absorption d'énergie maximale, identifié comme étant le temps de thermalisation au sein du gaz d'électrons, dépendait de l'énergie des photons incidents et se situait entre 5 fs à 3.2 eV et 80 fs à 1.3 eV. En 2000,

¹Contrairement aux techniques basées sur des changements dynamiques des constantes optiques macroscopiques (réflectivité, transmissivité), la photoémission résolue en temps permet une mesure directe de l'évolution temporelle de la distribution d'électrons photoexcités.

Del Fatti *et al* ont obtenu des temps de thermalisation inférieurs à 500 fs grâce une technique pompe-sonde à deux couleurs sur des échantillons d'argent et d'or [32].

D'un point de vue de la modélisation, la prise en compte de la thermalisation est très difficile. En s'affranchissant du potentiel électrostatique dû aux ions, nous pouvons considérer une population d'électrons évoluant plus ou moins indépendamment dans le métal. Suivant le degré d'approximation souhaité, nous pouvons en effet décrire ce sous-système par deux modèles distincts : un modèle cinétique ou un modèle fluide.

Le modèle cinétique associe aux électrons, considérés comme un gaz de fermions non-thermique, une fonction de distribution énergétique $f(\mathcal{E})$ que l'on évalue à chaque instant. Son comportement se déduit des forces appliquées au système ainsi que des collisions qu'il subit au cours du temps. Sous l'effet du champ électromagnétique, la réponse induite des électrons définit les indices d'absorption du métal. Ainsi, le dépôt d'énergie peut être déterminé à partir des fonctions diélectriques correspondantes. Le nombre d'occupation $f(\mathcal{E})$ sera alors modifié par les différents mécanismes d'absorption, intrabandes et interbandes. Ce modèle hors d'équilibre d'électrons intègre également les différents processus de collisions. Son utilisation nécessite de disposer d'opérateurs d'évolution de l'énergie \mathcal{E} . En pratique, ceci revient à résoudre l'équation de Boltzmann avec collisions :

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \vec{v} \cdot \frac{\partial f}{\partial \vec{r}} + \frac{\vec{F}}{m_e} \cdot \frac{\partial f}{\partial \vec{v}} = \mathcal{C}^+ + \mathcal{C}^- \quad (2.1)$$

Très sensible à la précision des opérateurs d'évolution (\mathcal{C}^+ et \mathcal{C}^-) utilisés, ce modèle présente néanmoins l'inconvénient d'être difficile à manipuler. L'ensemble du spectre énergétique doit, en outre, être étudié. S'il présente un grand intérêt pour l'évaluation de l'absorption optique sur une durée d'une centaine de femtosecondes, il reste très coûteux en temps de calcul et nous lui préférons un second modèle plus adapté pour décrire la redistribution énergétique.

Le modèle de type fluide suppose que l'énergie électronique soit uniquement d'origine cinétique : $\mathcal{E}_0 = \frac{1}{2}mv_0^2$. Ici, les électrons de conduction se déplacent librement dans tout le métal. Libres et indépendants, ils forment un gaz parfait de fermions délocalisés, enfermés dans le volume du métal. Sous cette approximation, nous négligeons les interactions ($e-e$) et ($e-ph$). L'absorption de l'énergie transmise conduit à élever l'énergie locale d'une quantité $e\phi$ où ϕ représente la composante temporelle du quadrivecteur potentiel électromagnétique $\tilde{V}(\phi, \vec{A})$. Les électrons subissant collectivement l'influence du champ électrique, l'énergie totale devient $\mathcal{E} = \frac{1}{2}mv_0^2 + e\phi = \frac{1}{2}mv^2$. L'équilibre est ainsi instantané et nous pouvons définir à chaque instant une température dont la valeur se déduit directement de l'énergie interne.

Toutes ces investigations sur la durée de thermalisation interne au système électronique laissent penser que le déséquilibre électronique existe tant que le nombre de collisions est insuffisant pour pouvoir définir une distribution de Fermi et une température locale associée. Néanmoins, ces effets deviennent très rapidement négligeables et seules les valeurs des variables macroscopiques durant l'impulsion laser incidente, même difficiles à déterminer, doivent être

considérées. Ainsi, Rethfeld s'est intéressé au temps de thermalisation électronique en résolvant numériquement les intégrales de collisions de l'équation de Boltzmann [122]. Celui-ci s'est avéré être inférieur à une picoseconde et il diminue fortement sous l'effet d'une augmentation de l'énergie interne électronique. Il nous a donc semblé légitime de supposer dans cette description d'échange d'énergie entre les deux sous-systèmes électrons et ions que ces espèces étaient, individuellement, en équilibre constant afin de faciliter la formulation de la dynamique électronique.

2.1.2 Modèle à Deux Températures

Le transfert d'énergie des électrons vers les ions du réseau cristallin est un processus lent vis à vis du processus d'absorption optique. Ceci provient de la grande différence de masse entre ces deux constituants. De manière équivalente, la différence de vitesse électronique de Fermi et de la vitesse du son a incité Kaganov *et al* à dissocier la réponse des deux systèmes lors d'une sollicitation électromagnétique, instaurant un déséquilibre entre ceux-ci [73]. Ces auteurs ont montré que le mécanisme de création de phonons était équivalent à un processus de radiation Čerenkov d'ondes sonores par le gaz d'électrons. En 1974, Anisimov *et al* furent les premiers à utiliser ces résultats pour dissocier les températures électronique et ionique pour traiter l'émission d'électrons par les métaux exposés aux impulsions ultracourtes [3]. Par la suite, en 1983, Eesley a identifié expérimentalement un déséquilibre entre les électrons et les ions au moyen de mesures pompe-sonde de réflectivités transitoires dans le cuivre [35, 36]. En 1987, Schoenlein *et al* ont reporté que cette distribution relaxait par thermalisation avec le réseau cristallin en deux ou trois picosecondes dans une cible d'or [130]. Dans le même temps, Elsayed-Ali *et al* sont parvenus à donner une mesure du temps de relaxation électron-phonon dans un film de cuivre mince au moyen de la modulation thermique de transmissivité après une impulsion laser pompe de 150-300 fs [39]. Un temps de relaxation compris entre une et quatre picosecondes est alors publié par ces auteurs. Depuis ces vingt dernières années, la majorité des études portant sur les effets liés aux impulsions ultracourtes ont utilisé un modèle à deux températures pour modéliser ce déséquilibre. Soulignons que dans le cadre des impulsions laser plus longues, ce type de découplage est tout simplement négligé puisque la relaxation de l'énergie intervient en quelques dizaines de picosecondes. Nous allons donner à présent les détails de ce modèle de déséquilibre thermique.

Dans le modèle à deux températures, la variable nombre d'occupation $f(\mathcal{E})$ est remplacée par les paramètres température, capacité, et énergie interne qui sont liés par la relation $U_e = C_e T_e$. Les collisions sont moyennées et sont en réalité sous-jacentes aux termes de transport macroscopiques que sont la diffusion électronique K_e et le flux temporel de transfert énergétique j_T . Ceci nous amène donc à considérer simultanément deux équations de la chaleur couplées de

la forme :

$$\begin{cases} C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla K_e \nabla T_e - j_T + D(z, t) \\ C_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = \nabla K_i \nabla T_i + j_T \end{cases} \quad (2.2)$$

Où C_e et C_i sont respectivement les capacités calorifiques volumiques électroniques et ioniques, T_e et T_i les températures correspondantes et j_T le terme de couplage. Enfin, $D(z, t)$ est le terme de source, il représente l'énergie déposée par le laser pendant un temps Δt . Nous verrons que les paramètres peuvent être reliés aux paramètres températures T_e et T_i . Ainsi, j_T prend la forme $\gamma \times (T_e - T_i)$ et la conductivité thermique la forme $K_e(T_e, T_i)$. Dans le cas d'un milieu où les phénomènes se développent suivant une symétrie monodimensionnelle plane, le système (2.2) s'écrit :

$$\begin{cases} C_e \frac{\partial}{\partial t} T_e = \frac{\partial}{\partial z} K_e(T_e, T_i) \frac{\partial}{\partial z} T_e - \gamma \times (T_e - T_i) + D(z, t) \\ C_i \frac{\partial}{\partial t} T_i = \frac{\partial}{\partial z} K_i(T_i) \frac{\partial}{\partial z} T_i + \gamma \times (T_e - T_i) \end{cases} \quad (2.3)$$

Le système (2.3) d'équations de propagation de la chaleur avec terme source, de type parabolique, est le plus communément utilisé. Nous allons à présent expliciter la méthode que nous avons employée pour le résoudre.

2.1.3 Résolution numérique des équations

Pour résoudre ce système dans le code DELPOR, nous les avons converties en termes de flux temporel d'énergie en intégrant chaque membre sur le volume des mailles. Les gradients de conductivité dans le système d'équations (2.3) sont ainsi remplacés par un terme de surface S_n égal à l'unité dans le cas monodimensionnel. Ce traitement en termes de flux d'énergie nous assure une conservation de l'énergie durant toute la résolution. Sur la figure (2.1), nous avons représenté schématiquement trois mailles successives aux interfaces desquelles sont localisés les paramètres demi-entiers. Les indices entiers correspondent, eux, aux paramètres relatifs à une maille.

Les conductivités thermiques K peuvent varier sensiblement entre deux mailles voisines. Or, c'est aux deux interfaces de chaque maille qu'elles doivent être évaluées. Ainsi, en notant n l'indice de discrétisation relatif à la maille considérée, nous avons remplacé K_n par les approximations à chaque interface $n + 1/2$ et $n - 1/2$ de surfaces respectives $S_{n+1/2}$ et $S_{n-1/2}$:

$$K_{n+1/2} = \frac{2K_n K_{n+1}}{K_n + K_{n+1}} \quad \text{et} \quad K_{n-1/2} = \frac{2K_n K_{n-1}}{K_n + K_{n-1}} \quad (2.4)$$

$K_{n+1/2}$ et $K_{n-1/2}$ étant respectivement les facteurs de conductivité thermique des mailles supérieures et inférieures.

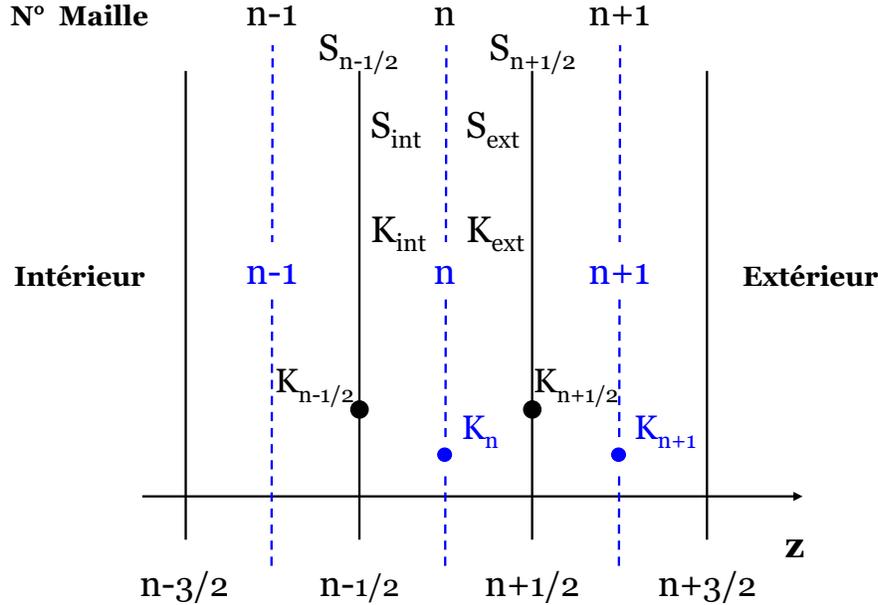


FIG. 2.1 – Discrétisation spatiale des mailles et représentation des paramètres nécessaires à la résolution des équations de diffusion.

Cette valeur « moyenne », proche de la moyenne harmonique $\sqrt{K_n K_{n+1}}$ pour un rapport K_n/K_{n+1} compris dans l'intervalle $[0.5, 2]$, permet de favoriser les petites valeurs de la conductivité car elle ne dépasse jamais le double de la plus petite valeur. Dans le cas particulier d'une interface entre le vide et un métal, ce type de calcul annule complètement la conductivité à l'interface. Ceci est très satisfaisant d'un point de vue physique puisque les conditions aux bords sont ainsi fixées.

La résolution numérique a été effectuée au moyen d'une discrétisation temporelle séparant deux itérations d'un pas de temps Δt , nous permettant de calculer T^{k+1} en fonction de T^k . Nous avons séparé les termes de source des termes de diffusion dans le calcul à chaque itération. Les termes de source et de transfert d'énergie sont traités dans un premier temps, indépendamment de la diffusion thermique. Ils n'impliquent pas de dérivée spatiale et un schéma d'Euler explicite suffit pour évaluer les variations de températures associées :

$$\begin{cases} T e_n^{k+1} = T e_n^k - \frac{\gamma \Delta t}{C e_n^k} (T e_n^k - T i_n^k) + \frac{D_n^k}{C e_n^k} \\ T i_n^{k+1} = T i_n^k + \frac{\gamma \Delta t}{C i_n^k} (T e_n^k - T i_n^k) \end{cases} \quad (2.5)$$

Ainsi, seules les conditions $\Delta t \leq \frac{2C_e}{\gamma}$ et $\Delta t \leq \frac{2C_i}{\gamma}$ doivent être vérifiées pour assurer la stabilité du schéma. Un pas de temps fixe et suffisamment petit a donc été utilisé puisque seul le paramètre capacité varie.

L'implémentation de la conduction thermique sans terme source constitue la seconde étape de la résolution. Elle nécessite plus de précaution et nous avons adopté un schéma d'Euler implicite¹ déjà utilisé dans le code pour résoudre la conduction thermique classique :

$$\begin{cases} T e_n^{k+1} = T e_n^k + \frac{2\Delta t}{C e_n^k \Delta z^2} \left[S_{n+1/2} K e_{n+1/2}^k (T e_{n+1}^{k+1} - T e_n^{k+1}) - S_{n-1/2} K e_{n-1/2}^k (T e_n^{k+1} - T e_{n-1}^{k+1}) \right] \\ T i_n^{k+1} = T i_n^k + \frac{2\Delta t}{C i_n^k \Delta z^2} \left[S_{n+1/2} K i_{n+1/2}^k (T i_{n+1}^{k+1} - T i_n^{k+1}) - S_{n-1/2} K i_{n-1/2}^k (T i_n^{k+1} - T i_{n-1}^{k+1}) \right] \end{cases}$$

Ce schéma implicite nous assure que les deux discrétisations ne peuvent pas « résonner ». Il n'y a ainsi aucune condition sur les pas Δt et Δz , ce qui facilite le traitement hydrodynamique dans le code. Nous avons donc été amenés à résoudre séparément les deux matrices tridiagonales suivantes :

$$\begin{pmatrix} b & a & 0 & \cdots & 0 \\ c & \ddots & \ddots & \ddots & \vdots \\ 0 & \ddots & \ddots & \ddots & 0 \\ \vdots & \ddots & \ddots & \ddots & a \\ 0 & \cdots & 0 & c & b \end{pmatrix} \begin{pmatrix} T_0^{k+1} \\ \vdots \\ T_n^{k+1} \\ \vdots \\ T_N^{k+1} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_0^k \\ \vdots \\ T_n^k \\ \vdots \\ T_N^k \end{pmatrix} \quad (2.6)$$

Où les termes de la sur-diagonale (a), de la diagonale (b) et de la sous-diagonale (c) sont définis par les relations :

$$\begin{cases} a^k = -\frac{2\Delta t}{C\Delta z} \left[S_{n+1/2} K_{n+1/2}^k \right] \\ b^k = \frac{2\Delta t}{C\Delta z} \left[S_{n+1/2} K_{n+1/2}^k + S_{n-1/2} K_{n-1/2}^k \right] \\ c^k = -\frac{2\Delta t}{C\Delta z} \left[S_{n-1/2} K_{n-1/2}^k \right] \end{cases} \quad (2.7)$$

La séparation des termes de couplage de ceux de diffusion nous a permis de conserver avec exactitude l'énergie totale apportée au système durant toute la résolution. La stabilité de notre

¹Les schémas implicites évaluent le gradient spatial au temps $k + 1$ de sorte que $\frac{\partial}{\partial z} T = \frac{T_{n+1}^{k+1} - T_n^{k+1}}{\Delta z}$. Ils assurent ainsi une meilleure stabilité du schéma numérique.

schéma numérique nous permet également d'avoir une bonne convergence des deux températures vers la température d'équilibre.

2.2 Définition des paramètres énergétiques

Les propriétés statistiques de la matière dense et ionisée dans la limite des grands numéros atomiques s'accordent avec l'approximation bien connue de Thomas-Fermi [46, 166]. Celle-ci s'appuie sur une combinaison de la statistique de Fermi appliquée aux électrons avec une interaction coulombienne pure entre eux et le noyau. Le potentiel chimique ainsi que la densité locale d'électrons sont déterminés grâce à un potentiel d'origine électrostatique. Adapté dans le cas des plasmas moyennement denses, il présente lui-même des limites pour les trop fortes densités et le modèle de Thomas-Fermi-Dirac permet de rendre compte des effets d'échange entre les électrons dégénérés. Ce dernier est lui-même corrigé au moyen d'un terme de divergence de densité électronique dans le Hamiltonien total, ce qui constitue l'approche de Thomas-Fermi-Dirac-Weizäcker [131].

A défaut de pouvoir décrire le gaz d'électrons avec une très grande rigueur de par la complexité des modèles mis en jeu, nous avons fait le choix, comme dans la plus grande majorité des publications sur le sujet, de décrire le système électronique par la voie la plus simple, facilement insérable dans le code. Celle-ci est basée sur l'approximation d'un gaz d'électrons libres décrit par une statistique de Fermi-Dirac [10], à laquelle on adjoint des grandeurs macroscopiques moyennées sur les interactions électron-électron et électron-phonon à travers cette même statistique.

Nous allons décrire ici les propriétés et les grandeurs macroscopiques que nous avons associées au modèle à deux températures. Les paramètres capacité calorifique, diffusivité et couplage régissent à eux seuls l'énergie interne finale déposée sur le réseau. Il convient donc de spécifier les hypothèses et les approximations effectuées afin de définir les limites du modèle et de dégager l'influence de chaque terme sur l'évolution thermodynamique du métal.

2.2.1 Capacité calorifique électronique

Etant données la densité d'électrons de conduction dans un métal (de l'ordre de $10^{22} \text{ e}^- \text{ cm}^{-3}$) et les températures électroniques maximales atteintes (de l'ordre de la température de Fermi $T_F \simeq 10^5 \text{ K}$), les effets quantiques du gaz électronique doivent être pris en compte. Leur nombre d'occupation $f(\mathcal{E})$ est alors décrit par une statistique de Fermi-Dirac :

$$f(\mathcal{E}, T_e) = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{\mathcal{E} - \mu}{k_B T_e}\right)} \quad (2.8)$$

où \mathcal{E} et μ représentent respectivement l'énergie du gaz d'électrons et le potentiel chimique.

Nous avons tenu compte de la masse effective en phase solide, qui corrige la valeur de la masse de l'électron due à l'écrantage ionique et électronique. Néanmoins, cette correction n'a plus lieu d'exister aux plus fortes températures et aux plus faibles densités. Nous avons alors adopté une masse optique, m_e^\dagger , variant avec T_e et N_e qui permettait de retrouver la capacité calorifique à 300 K et celle à la limite complètement dégénérée. La valeur de $(m_e^\dagger)^0$ à 300 K est donnée par Palik *et al* [113]. La dépendance de la masse optique en température et densité électronique a été supposée prendre la forme suivante :

$$m_e^\dagger = m_e + \left[(m_e^\dagger)^0 - m_e \right] \exp \left[-\frac{(T_e - T_e^0)}{T_e^0} \right] \exp \left[-\frac{(N_e - N_e^0)}{N_e^0} \right]$$

La densité d'états à l'énergie \mathcal{E} s'exprime sous la forme classique en fonction de la masse optique électronique :

$$n(\mathcal{E}) = \frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2m_e^\dagger}{\hbar^2} \right)^{3/2} \mathcal{E}^{1/2} \quad (2.9)$$

La densité volumique d'énergie interne du gaz électronique U_e et sa densité N_e s'écrivent alors en sommant sur tous les états d'énergie possibles :

$$\begin{cases} U_e = \int_0^\infty n(\mathcal{E}) f(\mathcal{E}) \mathcal{E} d\mathcal{E} \\ N_e = \int_0^\infty n(\mathcal{E}) f(\mathcal{E}) d\mathcal{E} \end{cases} \quad (2.10)$$

A T_e et N_e fixés, il suffit de rechercher la valeur du potentiel chimique μ satisfaisant l'équation (2.10). A ce stade, nous posons les variables sans dimension $x = \frac{\mathcal{E}}{k_B T_e}$ et $\eta = \frac{\mu}{k_B T_e}$.

Le potentiel chimique μ , ou ce qui est équivalent, la variable sans dimension $\eta = \frac{\mu}{k_B T_e}$ et la capacité calorifique se déduisent de la densité d'électrons N_e et de l'énergie U_e à la température T_e . En remplaçant les équations (2.8) et (2.9) dans (2.10) et en utilisant les variables sans dimension x et η , nous obtenons :

$$\begin{cases} U_e = A (k_B T_e)^{5/2} \int_0^\infty \frac{x^{3/2}}{1 + \exp(x - \eta)} dx \\ N_e = A (k_B T_e)^{3/2} \int_0^\infty \frac{x^{1/2}}{1 + \exp(x - \eta)} dx \\ A = \frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2m_e^\dagger}{\hbar^2} \right)^{3/2} \end{cases} \quad (2.11)$$

En posant $f(\eta) = \int_0^\infty \frac{x^{3/2}}{1 + \exp(x - \eta)} dx$ et d'après la propriété de récurrence des intégrales de Fermi¹, la densité N_e se met sous la forme :

$$N_e = \frac{2}{3} A (k_B T_e)^{3/2} \frac{\partial f(\eta)}{\partial \eta} = \frac{2}{3} A (k_B T_e)^{3/2} f'(\eta) \quad (2.12)$$

Nous déterminons la valeur du potentiel chimique de telle sorte qu'il vérifie l'équation précédente (2.12). Nous pouvons ensuite effectuer le calcul de la capacité calorifique électronique [33] :

$$\begin{aligned} C_e \hat{=} \left(\frac{\partial U_e}{\partial T} \right)_{N_e, V} &= (k_B T_e)^{5/2} \left[\frac{\partial A}{\partial T_e} f(\eta) + A \frac{\partial f(\eta)}{\partial T_e} \right] + A f(\eta) \frac{\partial}{\partial T_e} (k_B T_e)^{5/2} \\ &= \frac{5}{2} A (k_B T_e)^{3/2} k_B f(\eta) + A f'(\eta) \frac{\partial \eta}{\partial T_e} (k_B T_e)^{5/2} \end{aligned} \quad (2.13)$$

Nous voyons qu'il est nécessaire d'expliciter la dérivée partielle $\frac{\partial \eta}{\partial T_e}$ pour obtenir une expression dépendant uniquement de la température électronique. La capacité calorifique est calculée comme étant la variation d'énergie interne à densité constante, ce qui signifie que lors de la variation infinitésimale de température, la densité reste constante. Ainsi, en écrivant que $\frac{\partial N_e}{\partial T_e} = 0$, d'après (2.12), nous avons² :

$$\begin{aligned} \frac{\partial N_e}{\partial T_e} &= A \left[(k_B^{3/2} T_e^{1/2}) f'(\eta) + \frac{2}{3} (k_B T_e)^{3/2} f''(\eta) \frac{\partial \eta}{\partial T_e} \right] = 0 \\ \text{soit} \quad \frac{\partial \eta}{\partial T_e} &= -\frac{3}{2 T_e} \frac{f'(\eta)}{f''(\eta)} \end{aligned} \quad (2.14)$$

Et il ne reste plus qu'à injecter (2.14) dans l'expression (2.13) de C_e :

$$C_e = \frac{5}{2} A (k_B T_e)^{3/2} k_B f(\eta) - \frac{3}{2} A \frac{(k_B T_e)^{5/2}}{T_e} \frac{[f'(\eta)]^2}{f''(\eta)}$$

Et donc

$$C_e = \frac{3}{2} N_e k_B \left[\frac{5}{2} \frac{f(\eta)}{f'(\eta)} - \frac{3}{2} \frac{f'(\eta)}{f''(\eta)} \right] \quad (2.15)$$

L'expression précédente de C_e nous a ainsi conduit à calculer les dérivées successives de la fonction statistique de Fermi pour une température et une densité électronique données. Celles-

¹Les intégrales de Fermi obéissent à la loi de récurrence :

$$\frac{\partial I_\nu}{\partial \eta} = \nu I_{\nu-1} \text{ où } I_\nu(\eta) = \int_0^\infty \frac{x^\nu}{1 + \exp(x - \eta)} dx \quad \forall \nu > 1$$

²Où nous avons défini les dérivées première et seconde de $f(\eta)$ comme étant respectivement :

$$f'(\eta) = \frac{3}{2} \int_0^\infty \frac{x^{1/2}}{1 + \exp(x - \eta)} dx \text{ et } f''(\eta) = \frac{3}{2} \int_0^\infty \frac{x^{1/2}}{(1 + \exp(x - \eta))(1 + \exp(\eta - x))} dx$$

ci nous ont permis d'associer une valeur au potentiel chimique et à la capacité calorifique grâce aux relations (2.12) et (2.15).

Par ailleurs, pour des faibles températures électroniques ($T_e \ll T_F$), l'approximation de Sommerfeld donne une dépendance linéaire en T_e [10] :

$$C_e = \frac{\pi^2 N_e k_B}{2 T_F} T_e \quad (2.16)$$

Cette approximation présente l'avantage d'être plus facile à utiliser dans chaque maille, pour chaque pas de temps, mais le graphique (2.2) montre bien qu'elle est limitée à des températures inférieures à 20000 K. Ainsi, nous lui préférons l'expression plus exacte (2.15) dans la résolution du modèle.

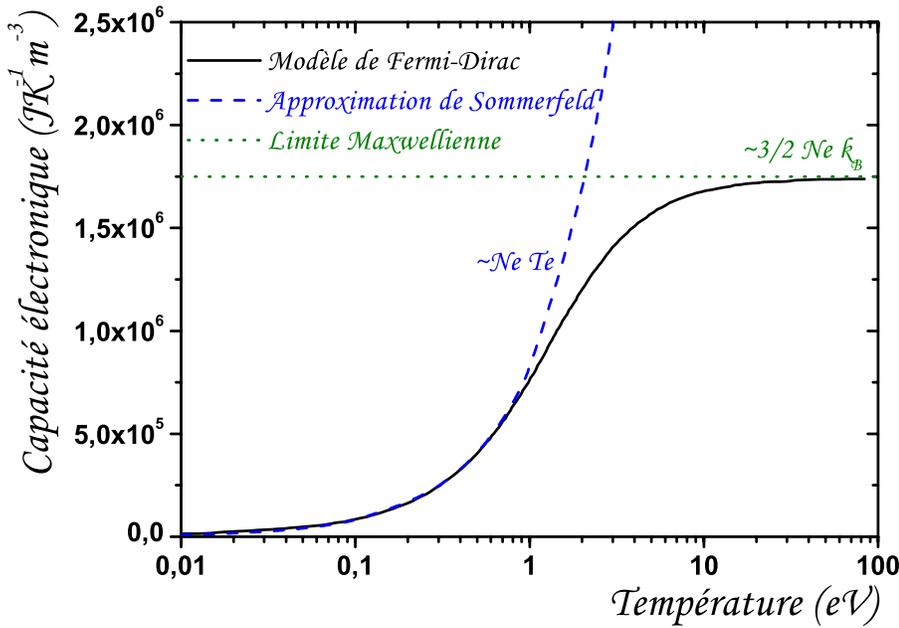


FIG. 2.2 – Les différents modèles de capacité calorifique du gaz d'électrons C_e dans le cas du cuivre. Les formes asymptotiques (modèle de Sommerfeld et modèle maxwellien) ne sont pas suffisantes pour décrire complètement l'évolution de capacité sur l'intervalle de température considéré.

C'est essentiellement le principe d'exclusion de Pauli qui régit le comportement du gaz d'électrons à basse température. En effet, à température nulle, seuls les états individuels d'énergie \mathcal{E} inférieurs à $\mu_0 = \mathcal{E}_F$ sont occupés, alors que les autres sont vides. Lorsque la température T_e augmente, une énergie d'excitation de l'ordre de $k_B T_e$ est proposée à chaque particule. Il s'ensuit que seuls les électrons possédant une énergie telle que $\mathcal{E} \geq \mathcal{E}_F - k_B T_e$ pourront bénéficier de cet apport d'énergie, les autres resteront confinés dans les niveaux d'énergie plus internes puisque les niveaux d'énergie $\mathcal{E} + k_B T_e$ sont déjà occupés. Par conséquent, seuls les fermions d'énergie

voisine de \mathcal{E}_F participent à l'augmentation d'énergie du système lors d'une l'augmentation de température.

La capacité calorifique réelle sature au delà de la température de Fermi vers la valeur classique $C_e = 3/2N_e k_B$. Cette saturation nous montre ainsi que si l'on augmente l'énergie linéairement, l'élévation de température électronique est de plus en plus marquée puisque lorsque la capacité calorifique est presque constante, l'augmentation de température suit linéairement l'augmentation d'énergie.

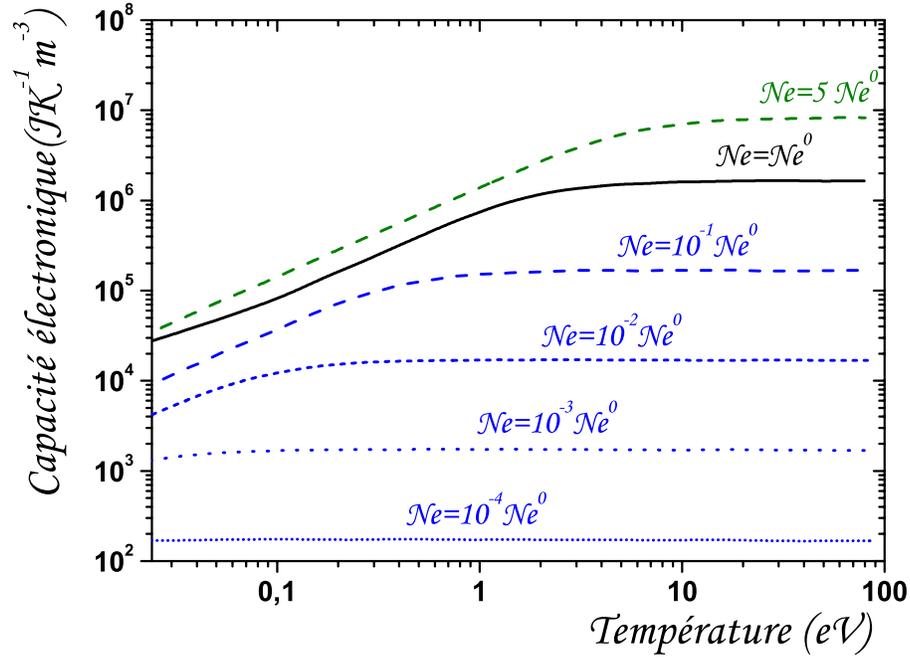


FIG. 2.3 – Capacité calorifique du gaz d'électrons C_e pour différentes densités électroniques dans le cas du cuivre.

Si à la limite classique les capacités calorifiques électronique et ionique sont toutes les deux égales à $3/2N_e k_B$, quelle que soit l'espèce considérée, nous avons vu qu'il n'en était rien à température standard, très inférieure à la température de Fermi où C_e est beaucoup plus faible. Ceci entraîne un fort déséquilibre lors du chauffage du système électronique, initiant alors le mécanisme de transfert d'énergie des électrons vers les ions.

2.2.2 Conductivité thermique électronique

Lorsque le système est amené dans un état de déséquilibre à la suite de conditions extérieures inhomogènes, par exemple en imposant un gradient de température, son évolution le conduit à une situation d'équilibre par l'intermédiaire des phénomènes de transport. Ceux-ci se composent, entre autres, du processus de conduction thermique qui a tendance à éliminer les gradients de température en imposant un flux de chaleur dans le milieu. La plus grande part du flux de chaleur

dans un métal est portée par les électrons qui répartissent l'énergie par collisions successives. Un modèle collisionnel simple basé sur le libre parcours moyen donne une expression de la conductivité sous la forme [77] :

$$K_e = \frac{1}{3} v_F C_e \tau \quad (2.17)$$

où $\tau = 1/\nu$ est la durée moyenne séparant deux collisions subies par les électrons et v_F est la vitesse des électrons à l'énergie de Fermi. D'après la règle de Matthiessen que nous exposerons au (§ 6.3.2), elle est composée des différentes contributions dues aux collisions et s'écrit :

$$\tau = \frac{1}{\nu_{e-e} + \nu_{e-ph}} \quad (2.18)$$

Trois degrés d'approximation sont régulièrement utilisés dans les publications fournissant des résultats sur ce modèle de diffusion. Dans la suite, nous allons comparer chacune des expressions obtenues pour préciser leur gamme de validité.

Dans le cas des faibles irradiations, nous pouvons faire l'hypothèse que la température électronique maximale atteinte est suffisamment basse pour pouvoir supposer que la fréquence de collisions ν_{e-e} est faible et que ν_{e-ph} domine. Il s'agit de l'approximation la plus simple où nous utilisons le fait que (2.18) devient $\tau \simeq \frac{1}{\nu_{e-ph}} \propto \frac{1}{T_i}$.

Dans ce premier degré d'approximation, nous pouvons estimer que la conductivité thermique dépend linéairement de T_e , après l'insertion du développement de Sommerfeld de la capacité calorifique (2.16) dans l'expression (2.17). Afin de remédier au problème d'une constante arbitraire dans le calcul de τ , nous gardons les dépendances en T_e et T_i reliées à un terme de proportionnalité commun K_e^0 . Ceci présente l'avantage d'avoir une conductivité thermique égale à la valeur d'équilibre K_e lors de la relaxation des deux températures. Ainsi, nous nous assurons que ce terme va correctement converger vers une valeur connue après un temps de relaxation suffisamment long. Nous écrirons donc :

$$K_e(T_e, T_i) = K_e^0 \frac{T_e}{T_i} \quad (2.19)$$

Toutefois, négliger les collisions ($e-e$) devant les collisions ($e-ph$) revient à se restreindre aux faibles valeurs de T_e et il est préférable d'ajouter une contribution supplémentaire au taux de collisions pour de plus fortes températures électroniques. Ainsi, en supposant que la fréquence de collisions ($e-e$) est proportionnelle à T_e^2 [10, 156], il vient :

$$K_e(T_e, T_i) = \mathcal{B} K_e^0 \frac{T_e}{\mathcal{A} T_e^2 + \mathcal{B} T_i} \quad (2.20)$$

Enfin, Anisimov et Rethfeld ont donné une expression empirique de la conductivité thermique à partir d'extrapolation entre la formule précédente et la dépendance en température de la conductivité plasma [4]. Elle s'écrit en fonction des variables réduites θ_e et θ_i qui sont les

températures électroniques et ioniques normalisées à la température de Fermi $\theta_e = T_e/T_F$ et $\theta_i = T_i/T_F$ [121] :

$$K_e(T_e, T_i) = \alpha \frac{(\theta_e^2 + 0.16)^{5/4} (\theta_e^2 + 0.44)}{(\theta_e^2 + 0.092)^{1/2} (\theta_e^2 + \beta \theta_i)} \theta_e \quad (2.21)$$

Les constantes α et β sont des grandeurs dépendant des fréquences de collisions, elles sont reliées aux paramètres \mathcal{A} et \mathcal{B} par les relations [121] :

$$\alpha = \frac{K_e^0 \mathcal{B}}{0.147 \mathcal{A} T_F} \text{ et } \beta = \frac{\mathcal{B}}{\mathcal{A} T_F}$$

Paramètre Matériau/Unité	N_e (m^{-3})	K_e^0 ($\text{JK}^{-1}\text{m}^{-1}\text{s}^{-1}$)	\mathcal{A} ($\text{s}^{-1}\text{K}^{-2}$)	\mathcal{B} ($\text{s}^{-1}\text{K}^{-1}$)	C_e^0 ($\text{Jm}^{-1}\text{K}^{-2}$)
Aluminium	1.8×10^{29}	237	2×10^7	7×10^{11}	127
Cuivre	8.45×10^{28}	398	1.75×10^7	1.98×10^{11}	96.6
Or	5.9×10^{28}	315	1.2×10^7	1.23×10^{11}	67.6

TAB. 2.1 – Valeurs numériques des paramètres utilisés dans les équations du modèle à deux températures pour les trois matériaux les plus utilisés dans nos simulations.

Sur la figure (2.4), nous avons représenté la dépendance en température électronique de chacune des approximations successives (2.19, 2.20 et 2.21) de la conductivité thermique électronique dans l'exemple du cuivre. La température ionique a été fixée à 300 K dans chacune des expressions et la densité est égale à la densité solide. Nous pouvons remarquer que l'utilisation de l'approximation linéaire de Sommerfeld conduit à une très forte surestimation de K_e dès que nous dépassons 0.2 eV (soit environ 2300 K) ce qui est inacceptable. En revanche, l'expression prenant en compte la dépendance en taux de collisions dans le solide admet un maximum pour une température de quelques milliers de kelvins lorsque les collisions de type électron-électron deviennent prépondérantes. Dans ce cas de figure, $\mathcal{B} T_i$ devient négligeable devant $\mathcal{A} T_e^2$, ce qui entraîne une dépendance en T_e^{-1} et donc une diminution de conductivité thermique avec l'augmentation de température électronique. Les expressions (2.20) et (2.21) sont alors très voisines, mais lorsque T_e atteint quelques eV, la dépendance plasma devient dominante. Ce changement de régime se traduit par une réaugmentation de la conductivité thermique qui reproduit alors la dépendance en $T_e^{5/2}$ valable pour les plasmas à haute température, s'écartant alors de la courbe tenant compte uniquement des taux de collisions.

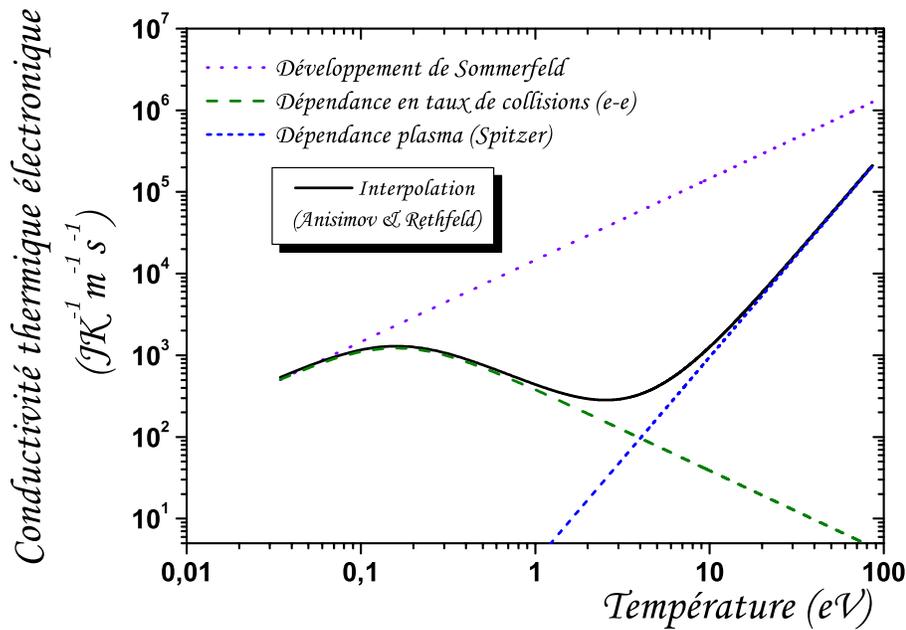


FIG. 2.4 – Dépendance en température électronique de la conductivité thermique électronique K_e pour différents modèles de conductivité. La température ionique a été fixée à celle du solide froid (300K).

Nous voyons ici la nécessité d'utiliser une expression adéquate de la conductivité thermique électronique si nous voulons décrire le processus de diffusion thermique sur une large gamme de température électronique. Ceci nous permettra de nous dégager au maximum des hypothèses réductrices et nous pouvons envisager des impulsions laser incidentes de plus ou moins fortes énergies. Il faut noter que les effets directement imputables aux variations de la conductivité thermique sur le taux d'ablation ont été étudiées par Kanavin *et al* [74]. Ils ont montré à l'aide d'un modèle analytique que la vitesse de propagation de la chaleur devenait indépendante du temps et diminuait avec l'augmentation de la fluence laser.

Enfin, nous présentons sur la figure (2.5) la dépendance en densité de l'expression (2.21). Les cas de surdensité (courbe hachée), et de sous-densité (en traits pointillés) sont comparés au cas à densité solide (en trait plein). Une diminution de la densité électronique conduit à un décalage du premier maximum atteint vers les basses températures, c'est à dire que la dominance des collisions de type électron-électron se produit plus tôt. Par contre, la dépendance plasma intervient pour des températures de plus en plus basses, au fur et à mesure que la densité s'abaisse.

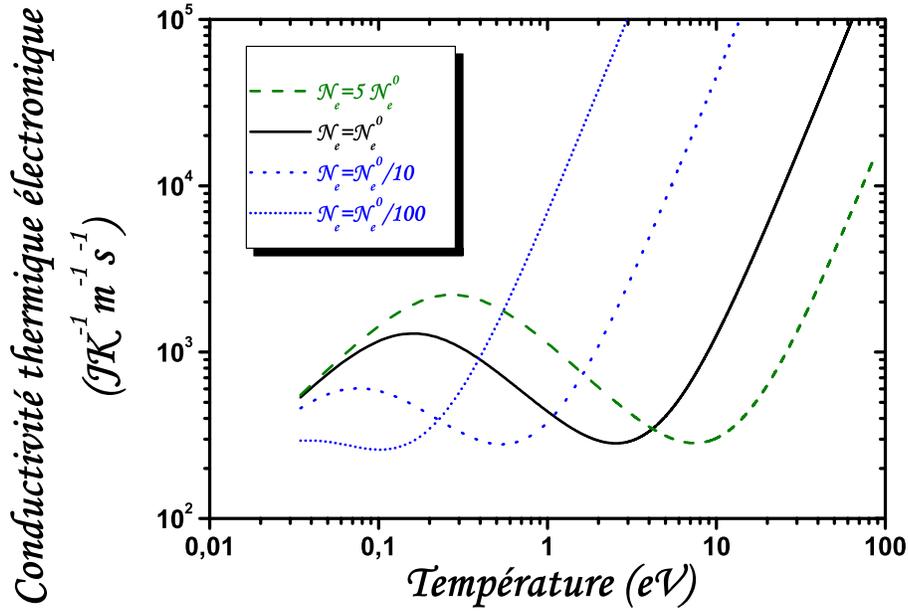


FIG. 2.5 – Dépendance en température électronique de la conductivité thermique électronique K_e de la forme (2.21) pour différentes densités électroniques. La température ionique a été fixée à celle du solide froid (300K).

La complexité de la dépendance de la conductivité thermique électronique en température et densité électronique, et ceci pour les différents temps à différentes profondeurs dans le matériau ne facilitent pas l'interprétation de l'effet de la diffusion thermique sur la dynamique du système électronique. Néanmoins, les figures précédentes laissent entrevoir la possibilité d'apparition de différents régimes de diffusion, pour des énergies incidentes variées. Il serait donc intéressant d'effectuer une étude plus détaillée de la dépendance du profil d'énergie thermique en fonction de l'énergie initialement introduite afin de révéler des régimes efficaces pour améliorer la diffusion de l'énergie dans le milieu. Une analyse des profils de température obtenus après diffusion thermique sera présentée dans la suite (§ 2.3.1).

2.2.3 Coefficient de couplage thermique électron-réseau

Les interactions électrons-phonons sont responsables du transfert d'énergie entre le système électronique et le réseau. Le terme de couplage est donc, lui aussi, de nature statistique-collisionnelle. Les phonons considérés appartiennent en majorité au mode acoustique et nous supposons que seuls ceux-ci participent aux interactions. Le flux d'énergie transféré au réseau, j_T , constitue le terme de perte de l'équation de chaleur (2.2) du modèle à deux températures. Par définition, $j_T \hat{=} \frac{\partial U_T}{\partial t}$ où U_T , énergie transférée, est de la forme (2.10) d'où :

$$j_T = \int_0^\infty \frac{\partial}{\partial t} [n(\mathcal{E})f(\mathcal{E})\mathcal{E}] d\mathcal{E} = \int_0^\infty n(\mathcal{E})\mathcal{E} \frac{\partial}{\partial t} [f(\mathcal{E})] d\mathcal{E} \quad (2.22)$$

Nous nous proposons ici de déterminer la dépendance en températures électronique et ionique du terme de transfert d'énergie U_T . La quantité d'énergie échangée au cours d'un intervalle de temps Δt est obtenue en sommant la probabilité de transition dans l'espace (isotrope) des impulsions. Tous les vecteurs d'onde des phonons appartenant à la 1^{ère} zone de Brillouin sont ainsi pris en compte. Nous noterons $\mathcal{F}(f, N)$ cette probabilité de transition qui inclue le principe de Pauli, où $N(u)$ décrit la statistique de Bose-Einstein associée aux phonons d'énergie u :

$$N_u = \frac{1}{\exp\left(\frac{u}{k_B T_i}\right) - 1}$$

Nous sommes amenés à considérer l'intégrale d'interaction entre un électron et un phonon appartenant à la 1^{ère} zone de Brillouin, ce qui se traduit en terme de transfert d'énergie [56] :

$$n(\mathcal{E})\mathcal{E}\frac{\partial}{\partial t}[f(\mathcal{E})] = \mathcal{C}^T \mathcal{E} \int_0^{u_D} \mathcal{F}(f, N_u)u^2 du \quad (2.23)$$

Où \mathcal{C}^T est une constante et où l'énergie des phonons au bord de la zone de Brillouin, u_D , s'exprime en fonction de la vitesse du son c_S et de la distance interatomique d suivant la relation de Debye $u_D = \left(\frac{3}{4\pi}\right)^{1/3} \frac{2\pi c_S}{d}$. Si nous nous intéressons uniquement aux interactions avec les phonons acoustiques, quatre cas doivent être considérés, que nous représentons sur les figures (2.6) à (2.9).

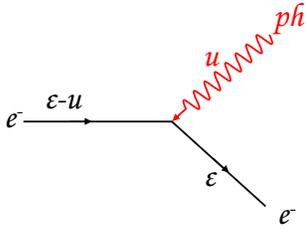


FIG. 2.6 - $\mathcal{F}_1 \propto f(\mathcal{E} - u)[1 - f(\mathcal{E})]N_u$

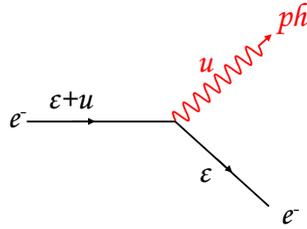


FIG. 2.7 - $\mathcal{F}_2 \propto f(\mathcal{E} + u)[1 - f(\mathcal{E})](1 + N_u)$

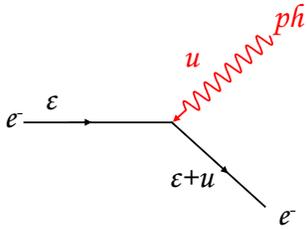


FIG. 2.8 - $\mathcal{F}_3 \propto f(\mathcal{E})[1 - f(\mathcal{E} + u)]N_u$

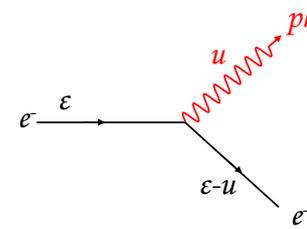


FIG. 2.9 - $\mathcal{F}_4 \propto f(\mathcal{E})[1 - f(\mathcal{E} - u)](1 + N_u)$

Le terme de transition $\mathcal{F}(f, N_u)$ est ainsi défini par la relation :

$$\begin{aligned}\mathcal{F}(f, N_u) &= \mathcal{F}_1(f, N_u) + \mathcal{F}_2(f, N_u) + \mathcal{F}_3(f, N_u) + \mathcal{F}_4(f, N_u) \\ &= f(\mathcal{E} - u)[1 - f(\mathcal{E})]N_u - f(\mathcal{E})[1 - f(\mathcal{E} - u)](1 + N_u) \\ &\quad + f(\mathcal{E} + u)[1 - f(\mathcal{E})](1 + N_u) - f(\mathcal{E})[1 - f(\mathcal{E} + u)]N_u\end{aligned}\quad (2.24)$$

L'énergie des phonons est de l'ordre de 10^{-2} eV alors que celle des électrons est typiquement de l'ordre de quelques eV. Il est donc possible de négliger la première devant la seconde et de développer ainsi la fonction $\mathcal{F}(f, N_u)$ à un ordre judicieux en u . Un développement de Taylor au 1^{er} ordre ne permet pas de dégager de dépendance en température. Par contre, une approximation à un ordre supérieur à deux s'avère inadaptée. Nous avons donc limité notre développement $\mathcal{F}(f, N_u)$ au deuxième ordre en u^1 . Nous obtenons ainsi l'expression simplifiée de $\mathcal{F}(f, N_u)$:

$$\mathcal{F}(f, N_u) \simeq u \frac{\partial}{\partial \mathcal{E}} [f(\mathcal{E})(1 - f(\mathcal{E}))] + (1 + 2N_u) \frac{\partial^2}{\partial \mathcal{E}^2} f(\mathcal{E}) \quad (2.25)$$

De plus, T_D étant inférieure à la température ambiante et à T_i , nous pouvons négliger l'énergie de Debye devant l'énergie du métal, $\left(\frac{u_D}{k_B T_i} \ll 1\right)$. Ce qui nous permet d'obtenir² :

$$\begin{aligned}\mathcal{F}(f, N_u) &\simeq u \left[\frac{\partial}{\partial \mathcal{E}} \{f(\mathcal{E})[1 - f(\mathcal{E})]\} + k_B T_i \frac{\partial^2 f(\mathcal{E})}{\partial \mathcal{E}^2} \right] \\ &\simeq u \left[-k_B T_e \frac{\partial^2 f(\mathcal{E})}{\partial \mathcal{E}^2} + k_B T_i \frac{\partial^2 f(\mathcal{E})}{\partial \mathcal{E}^2} \right] \\ &\simeq u k_B (T_i - T_e) \frac{\partial^2 f(\mathcal{E})}{\partial \mathcal{E}^2}\end{aligned}\quad (2.26)$$

En remplaçant l'expression (2.26) de $\mathcal{F}(f, N_u)$ dans l'équation (2.23), nous aboutissons à :

$$\begin{aligned}n(\mathcal{E}) \mathcal{E} \frac{\partial}{\partial t} [f(\mathcal{E})] &= \mathcal{C}^T (T_i - T_e) \mathcal{E} \int_0^{u_D} u^3 du \\ &= \gamma' (T_i - T_e) \mathcal{E} \frac{\partial^2 f(\mathcal{E})}{\partial \mathcal{E}^2}\end{aligned}\quad (2.27)$$

où $\gamma' = 4 \mathcal{C}^T k_B / u_D^4$. En utilisant l'expression de chacun des termes et en supposant que l'énergie des électrons est grande devant celle des phonons, j_T s'écrit donc en termes de températures électronique et ionique :

$$j_T = \int_0^\infty \gamma' (T_i - T_e) \frac{\partial f(\mathcal{E})}{\partial \mathcal{E}} d\mathcal{E} = \gamma' (T_e - T_i) \left\{ \left[\mathcal{E} \frac{\partial f(\mathcal{E})}{\partial \mathcal{E}} \right]_0^\infty - \int_0^\infty \frac{\partial f(\mathcal{E})}{\partial \mathcal{E}} d\mathcal{E} \right\} \quad (2.28)$$

¹ $f(\mathcal{E} + u) = f(\mathcal{E}) + u \frac{\partial f(\mathcal{E})}{\partial \mathcal{E}} + \frac{u^2}{2} \frac{\partial^2 f(\mathcal{E})}{\partial \mathcal{E}^2}$ et $f(\mathcal{E} - u) = f(\mathcal{E}) - u \frac{\partial f(\mathcal{E})}{\partial \mathcal{E}} + \frac{u^2}{2} \frac{\partial^2 f(\mathcal{E})}{\partial \mathcal{E}^2}$
² $1 + 2N_u = 1 + \frac{1}{\exp\left(\frac{u}{k_B T_i}\right) - 1} \simeq 1 + \frac{2k_B T_i}{u} \simeq 2 \frac{k_B T_i}{u}$

Enfin, l'expression du flux transféré s'obtient en introduisant la constante $\gamma \simeq \gamma'$ de couplage conventionnel ($e-ph$) :

$$j_T = \gamma' f(0)(T_e - T_i) = \gamma(T_e - T_i) \quad (2.29)$$

Nous avons ainsi obtenu un terme de transfert proportionnel à la différence des deux températures. Sous cette forme simple, nous pouvons alors l'insérer facilement dans les équations du modèle. Nous avons fixé les valeurs de γ à $3 \times 10^{16} \text{ WK}^{-1} \text{ m}^{-3}$ pour le cuivre [31], $3 \times 10^{17} \text{ WK}^{-1} \text{ m}^{-3}$ pour l'aluminium [43] et $2 \times 10^{17} \text{ WK}^{-1} \text{ m}^{-3}$ pour l'or [156]. Il est important de faire remarquer que le régime hydrodynamique induit par le transfert d'énergie débute lorsque le libre parcours moyen des électrons devient plus petit que la longueur d'onde du phonon. Nous pouvons également souligner que le taux de collisions ($e-ph$) détermine le profil de chauffage dans le matériau. Enfin, il faut noter que l'expression du transfert thermique ne prend pas en compte certains phénomènes pouvant devenir non négligeables pour des hautes températures électroniques. Ainsi, il est possible que des processus de type *Umklapp* deviennent importants lorsque T_e devient de l'ordre de quelques eV. La variation du vecteur d'onde total n'étant pas nulle mais égale à un vecteur du réseau réciproque, il faudrait étendre notre domaine d'énergie des phonons au delà de la 1^{ère} zone de Brillouin. Ceci conduirait à une augmentation du flux de transfert. La diffusion thermique serait alors réduite au profit du transfert vers les ions, restreignant ainsi l'énergie en surface.

2.3 Etablissement de la distribution spatiale énergétique

Afin de mettre en évidence la dynamique de la montée en température du matériau, nous allons présenter les caractéristiques de la diffusion thermique électronique et du transfert d'énergie des électrons vers les ions. A travers l'exemple d'une impulsion de 800 nm, de 150 fs, de 5 J cm^{-2} irradiant une cible de cuivre, le modèle à deux températures est illustré par l'étude de l'évolution du profil de température électronique et du retour à l'équilibre de la température de surface de l'échantillon.

2.3.1 Profil de dépôt d'énergie

La diffusion thermique électronique conduit à un élargissement du profil de température électronique dans le métal avant la thermalisation électrons-réseau. Le changement de pente de la courbe de température définit la position du front de diffusion thermique. Durant toute la durée du transfert d'énergie électrons-réseau (environ 25 ps dans le cas du cuivre), nous pouvons remarquer que ce front de diffusion est de moins en moins marqué ce qui est caractéristique de la diffusion thermique électronique. Les gradients de température tendent à s'équilibrer de proche en proche lors des collisions subies au sein du gaz d'électrons. L'implantation de l'énergie dans le métal est régie principalement par ce processus de diffusion. L'énergie thermique se répartit

par propagation à la manière d'une onde thermique électronique qui se propagerait à travers le métal. L'évolution de sa position en fonction du temps est décrite par l'équation :

$$z(t) = \sqrt{\frac{K_e}{C_e} t}$$

La vitesse de propagation de cette onde thermique dépend ainsi de la température et de la densité électronique par l'intermédiaire de K_e et C_e . Le transfert d'énergie fige au fur et à mesure l'énergie se propageant vers l'intérieur plus froid. Ce dernier détermine complètement le chauffage ionique en l'absence d'effets mécaniques dus à la propagation d'une onde de choc. Le profil des températures ioniques dépend donc fortement de la dépendance en températures du coefficient de diffusion électronique K_e .

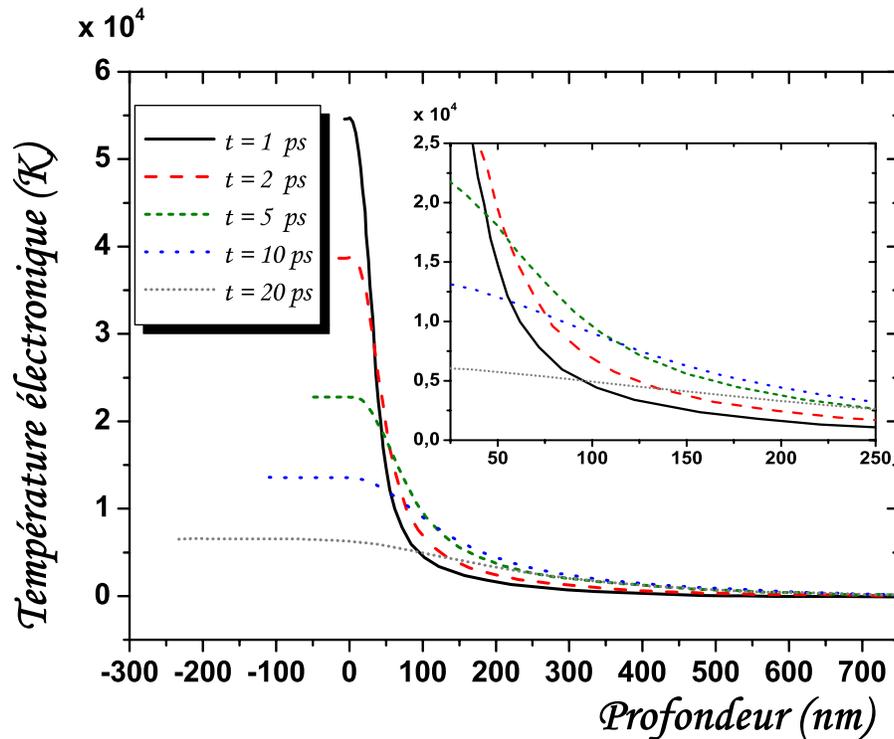


FIG. 2.10 – Illustration du processus de diffusion thermique électronique dans un échantillon de cuivre. La fluence incidente était fixée à 5 J cm^{-2} . Le profil de température électronique s'élargissant en fonction du temps est plus facilement visible sur le zoom inséré dans la figure.

Sur la figure (2.10), nous avons superposé les profils de température électronique pour différents temps dans un échantillon de cuivre. Si le gradient de température est très raide dans les premiers instants suivant l'impulsion, il diminue progressivement au cours de la thermalisation avec le réseau cristallin. Le croisement des profils de température, apparaissant plus distinctement sur le zoom, montrent bien l'effet du processus de diffusion sur la répartition, de plus en plus homogène de l'énergie thermique.

2.3.2 Le processus de relaxation

Pour visualiser le processus de couplage, nous pouvons étudier la courbe de l'évolution temporelle des deux températures dans une maille donnée. Il est important de faire remarquer que la relaxation de l'énergie n'intervient pas dans toutes les cellules du maillage (ou, ce qui est équivalent, dans l'ensemble de l'échantillon) au même instant. Le temps défini comme étant le temps de relaxation correspondra ainsi au temps mis par le matériau pour que les températures électroniques et ioniques s'équilibrent dans l'ensemble de l'échantillon. Nous présentons sur la figure (2.11) la montée en température ionique à la surface du matériau.

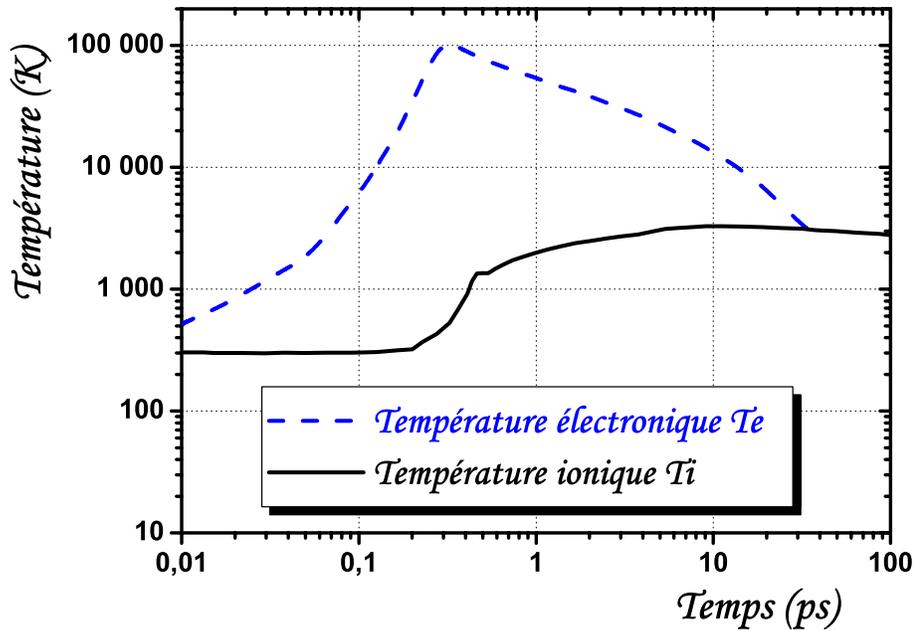


FIG. 2.11 – Thermalisation électron-ion dans la maille de surface. Exemple d'un échantillon de cuivre sujet à une impulsion de 5 J cm^{-2} , d'une durée de 150 fs (FWHM).

La température électronique suit une loi gaussienne conformément à la distribution temporelle de la source laser incidente sur une centaine de femtosecondes. Elle présente néanmoins un maximum plus tardif que celui du laser en raison de l'accumulation progressive d'énergie du système électronique pendant toute la durée de l'impulsion. La décroissance s'amorce lorsque les effets conjugués de la diffusion vers les mailles internes et du couplage électrons-réseau deviennent supérieurs à l'énergie électromagnétique localement absorbée. La température T_i augmente simultanément jusqu'à saturer à l'équilibre thermique, la variation temporelle d'énergie diminuant avec la différence de T_e et T_i . Nous pouvons noter que les effets de la conductivité thermique ionique ne prennent le relais que bien plus tard, une fois que le couplage est terminé.

Nous venons d'exposer le modèle utilisé pour introduire un déséquilibre thermique électron-réseau dans le code DELPOR. Il nécessitait l'utilisation d'une équation d'état électronique ainsi que divers paramètres tels que la capacité calorifique électronique, la conductivité thermique électronique ainsi qu'un facteur de couplage ($e-ph$). Nous avons donné une expression appropriée de ces paramètres qui, associée aux valeurs répertoriées dans la littérature, nous permettent de calibrer le déséquilibre sur des observations expérimentales. Si ce modèle permet d'apporter des informations sur les caractéristiques du chauffage ultrabref, il ne peut pas être utilisé seul pour décrire les phénomènes d'ablation à moins d'être adjoint de critères arbitraires. La description de ces processus requiert que ce modèle soit utilisé dans un contexte plus général, que nous allons présenter dans les deux prochains chapitres.

Equation d'état du réseau cristallin

Une équation d'état (EOS) est une description des propriétés thermodynamiques de la matière qui définit les caractéristiques fondamentales de celle-ci dans une large zone du diagramme de phase. Les équations d'état doivent permettre l'étude des propriétés thermodynamiques d'une grande variété de matériaux pour d'extrêmes conditions de pression et de température tout en tenant compte des changements d'état. Elles constituent la relation de fermeture indispensable aux équations gouvernant la dynamique du système. Ainsi, il s'agit d'un outil approprié pour relier de manière univoque les différentes grandeurs thermodynamiques du système en exploitant à la fois les données expérimentales et les informations théoriques accessibles. La faisabilité et la précision des simulations numériques sont alors dépendantes de l'étendue des informations fournies par l'EOS sur la gamme d'énergie, pression et température considéré.

Pour résoudre les problèmes typiques liés aux effets résultants d'un important flux d'énergie dans un matériau condensé, une connaissance précise des propriétés du matériau est requise. Les approches théoriques les plus sophistiquées telles que les méthodes de champs auto-consistants classiques et quantiques, les techniques Monte-Carlo et les méthodes de dynamique moléculaire sont très performantes dans le domaine d'application en température et densité qui leur est propre [45]. Néanmoins, le problème qui nous intéresse ici, suppose une description adéquate de l'évolution des propriétés thermodynamiques du solide froid subissant des transformations jusqu'à la phase liquide, gazeuse, voire même jusqu'au plasma chaud. L'évolution des plasmas denses et chauds est difficilement descriptible de par le manque d'informations expérimentales et théoriques dans ce domaine. En effet, les fortes interactions collectives entre particules dans ces milieux denses et désordonnés sont le sujet d'intenses recherches actuelles [45]. L'intérêt des EOS que nous avons utilisées est de permettre une description relativement précise grâce à une formulation théorique de l'évolution des grandeurs principales contenant des paramètres ajustés de façon à restituer certains résultats expérimentaux.

3.1 Les équations d'état disponibles

Même si dans ce travail de thèse, un seul type d'EOS a été utilisé pour des raisons que nous allons expliciter par la suite, il est opportun de présenter les différentes équations d'état disponibles, utilisées par différents groupes et ainsi rencontrées dans la littérature.

3.1.1 Les équations SESAME

Tout d'abord, les EOS faisant l'objet du plus grand nombre d'utilisation ainsi que du plus large éventail de matériau sont les EOS SESAME. Ces tables d'équations d'état SESAME ont été développées au *Los Alamos National Laboratory* depuis la fin des années 70. Elles comprennent près de 200 matériaux : gaz, métaux minéraux et polymères ainsi que certains mélanges. Cette base de donnée provient de plusieurs sources différentes. Suivant le domaine considéré, les informations sont extraites de modèles théoriques, d'expériences dédiées (telles que des données Hugoniot), ou encore d'un mélange des deux au moyen de paramètres ajustés sur des comportements asymptotiques ou des résultats expérimentaux pour un point précis. Elles se présentent sous la forme d'une bibliothèque comprenant plusieurs fichiers de points pour un même matériau (quelques dizaines pour l'aluminium). Pour une densité et une température donnée, elle fournit la valeur tabulée de l'énergie interne et de la pression sur un domaine très étendu. Il suffit alors d'effectuer une interpolation bidimensionnelle pour avoir le couple désiré.

Suivant le matériau, certaines sont multiphases, d'autres autorisent un découplage thermique électron-ion. Les modèles théoriques distinguent les composantes froides, thermiques et thermiques électroniques dans les matériaux les plus utilisés comme les métaux. Dans ce cas, les électrons sont décrits sur la base du modèle de Thomas-Fermi-Dirac et les propriétés thermodynamiques ioniques suivent un comportement de type Grüneisen pour les phases surdenses et le modèle de van der Waals pour des densités inférieures à la densité solide. D'autres modèles plus spécifiques sont aussi utilisés en fonction du matériau et de la région considérée dans le diagramme de phase. Ces EOS ont l'avantage d'être très facile à utiliser et peu coûteuses en temps de calcul. Néanmoins, elles ne bénéficient pas toujours d'une bonne continuité entre les différents modèles ce qui engendre régulièrement des erreurs d'interpolation ou fournit de mauvaises dérivées numériques pour certaines quantités comme la vitesse du son. De plus, l'utilité du système est limitée aux nombres de tables de données disponibles. Pour outrepasser ces restrictions, R. More a mis au point les équations d'état QEOS qui, pour remplacer le processus de lecture-interpolation, calculent les propriétés thermodynamiques de manière semi-analytique.

3.1.2 Le modèle de More - QEOS

More *et al* du *Lawrence Livermore National Laboratory* ont développé un modèle d'EOS baptisé Quotidian Equation of State (QEOS) en 1988 [104]. Il est couramment utilisé au sein de simulations nécessitant la prise en compte des phases solides et liquides avant l'apparition du plasma créé par laser. Le modèle QEOS décrit les relations thermodynamiques au moyen

du potentiel de Helmholtz dissocié en trois contributions distinctes. La première est relative à la contribution due aux électrons libres et est basée sur le modèle de Thomas-Fermi. La seconde rend compte des effets associés aux ions grâce au modèle de Cowan, qui est lui-même une compilation de plusieurs modèles : gaz parfait à haute température, Thomas-Fermi pour les hautes densités et basses températures ainsi que le modèle de Grüneisen pour les solides. Enfin, le modèle de Barnes fournit la dernière contribution, décrivant les forces de cohésion, ajustées de manière à annuler la pression du solide froid. Les QEOS constituent une équation d'état approchée, présentant un bon comportement pour la plupart des matériaux. L'écriture des modèles sous leur forme analytique favorise la facilité d'insertion dans les simulations pour une grande variété d'utilisation. De plus, les QEOS peuvent être manipulées avec un traitement séparé des températures électroniques et ioniques [108] ce qui est une condition nécessaire à son utilisation dans des simulations d'interaction laser avec des impulsions ultracourtes. Néanmoins, certains paramètres thermodynamiques ou certains comportements ne sont pas parfaitement reproduits. Ainsi, une surestimation de la température critique T_C (et ceci d'un facteur 2) a été reportée dans l'aluminium [23, 138, 153]. En effet, la valeur de T_C donnée par cette EOS est d'environ 1.04 eV pour ce métal alors qu'elle a été estimée expérimentalement autour de 0.55 eV.

Il est enfin à noter que le groupe de F. Vidal au Québec, a opté pour une utilisation conjointe des équations d'état QEOS et SESAME pour l'aluminium [88]. Ainsi, il utilise la première pendant la phase d'ablation jusqu'à l'apparition du plasma, et la seconde lors de la phase d'expansion plasma. Ils ont remarqué que les QEOS étaient plus stables numériquement que le modèle SESAME pour décrire la transition solide-plasma. Cependant, SESAME serait plus approprié à basse densité et basse température [24].

3.1.3 Equations d'état de Bushman-Lomonosov-Fortov (BLF)

Enfin, les équations d'état de Bushman-Lomonosov-Fortov (BLF) sont celles que nous avons privilégiées dans nos simulations [23]. Elles présentent l'avantage d'être multiphasées et d'être ainsi parfaitement adaptées pour reproduire le comportement du matériau au voisinage des changements d'état. Les transitions solide-plasma suivent des parcours thermodynamiques cohérents avec les données disponibles, expérimentales ou issues des modèles théoriques de physique du solide ou de plasma dense. Les données sont accessibles sous forme tabulée, regroupées dans des grilles dédiées pour chacun des matériaux. Nous disposons alors de points d'énergie et de pression en fonction de la température et de la densité entre lesquels il est commode d'effectuer des interpolations. Dans le code DELPOR, cette forme source a été retenue pour plusieurs raisons. Tout d'abord, la conception et l'utilisation des tableaux est une méthode facile d'utilisation. Ensuite ils présentent l'avantage d'être très peu gourmands en temps de calcul, ce qui est un atout non négligeable pour l'utilisateur. Ils peuvent également être soumis à l'œil averti de ce dernier afin d'en extraire les points aberrants et ainsi limiter les problèmes non élucidés lors de l'utilisation de *boîtes noires* telles que ces EOS. Enfin, une des qualités primordiales de ces

équations d'état est de pouvoir fournir un seul et unique couple de variables thermodynamiques [par exemple (E,P)] au couple imposé [par exemple (T,ρ)]. Cette dernière qualité est assurée par la bijectivité des réseaux de courbes lors de l'inversion de couples de variables, et celle-ci peut facilement être imposée dans une grille ou dans une interpolation de données.

Nous allons maintenant décrire brièvement les modèles semi-empiriques ayant servi à la construction des EOS BLF utilisées lors des simulations relatives à cette étude [23, 96].

3.2 Détail du modèle de l'EOS multi-phase

Pour un métal, une EOS thermodynamiquement complète est définie grâce au potentiel thermodynamique de l'énergie libre \mathcal{F} qui s'écrit comme la somme de trois contributions. La première est une contribution élastique dite froide puisque théorique à $T = 0\text{K}$, elle est notée \mathcal{F}_c . La seconde contribution, \mathcal{F}_a décrit la contribution thermique par atome. Enfin \mathcal{F}_e donne la contribution thermique électronique. Le potentiel total s'écrit alors en fonction de la température d'équilibre T et du volume spécifique $\mathcal{V} = 1/\rho$:

$$\mathcal{F}(\mathcal{V}, T) = \mathcal{F}_c(\mathcal{V}) + \mathcal{F}_a(\mathcal{V}, T) + \mathcal{F}_e(\mathcal{V}, T) \quad (3.1)$$

A partir de ce potentiel, il est possible de déterminer certaines grandeurs comme la pression $P = - \left. \frac{\partial \mathcal{F}^{(s)}}{\partial \mathcal{V}} \right|_T$ ou l'entropie $S = - \left. \frac{\partial \mathcal{F}^{(s)}}{\partial T} \right|_{\mathcal{V}}$. Dans la suite, nous allons détailler chacune des composantes de \mathcal{F} afin de clarifier les processus physiques envisagés dans l'équation d'état.

3.2.1 Contribution de la courbe froide

Les composantes élastiques de la pression et de l'énergie interne sont déterminées par les interactions atomiques à température nulle. La relation existante entre la pression P et le volume spécifique \mathcal{V} à température nulle est schématisée sur la figure (3.1). Nous savons qu'elle résulte de l'équilibre de deux types de forces, les forces répulsives entre atomes à courte distance de nature électrostatique et les forces d'attractions de van der Waals qui diminuent rapidement avec la distance. Un minimum en énergie est atteint à la position d'équilibre \mathcal{V}_c^0 qui correspond au volume spécifique à température nulle, proche de celui à température ambiante. Lorsque le volume spécifique augmente, l'énergie interne froide augmente à cause du potentiel électrostatique qui tend à ramener les atomes vers leur position d'équilibre, jusqu'à ce que la matière perde sa cohésion et l'énergie interne correspondante avoisine alors la chaleur latente de sublimation E_{sub} . Pour les métaux, E_{sub} est de l'ordre de quelques eV par atome. Dans le cas des métaux que nous étudierons par la suite, $E_{sub} = 3.39$ eV/atome dans l'aluminium et $E_{sub} = 3.49$ eV/atome dans le cuivre [77]. En fait, le minimum (négatif) en pression correspond à un volume spécifique où les distances interatomiques sont environ doublées par rapport à celle de \mathcal{V}_c^0 . Ce minimum est largement supérieur à la tension de rupture en traction du matériau, qui peut être ainsi attribuée aux imperfections et à la structure polycristalline des métaux usuels [71].

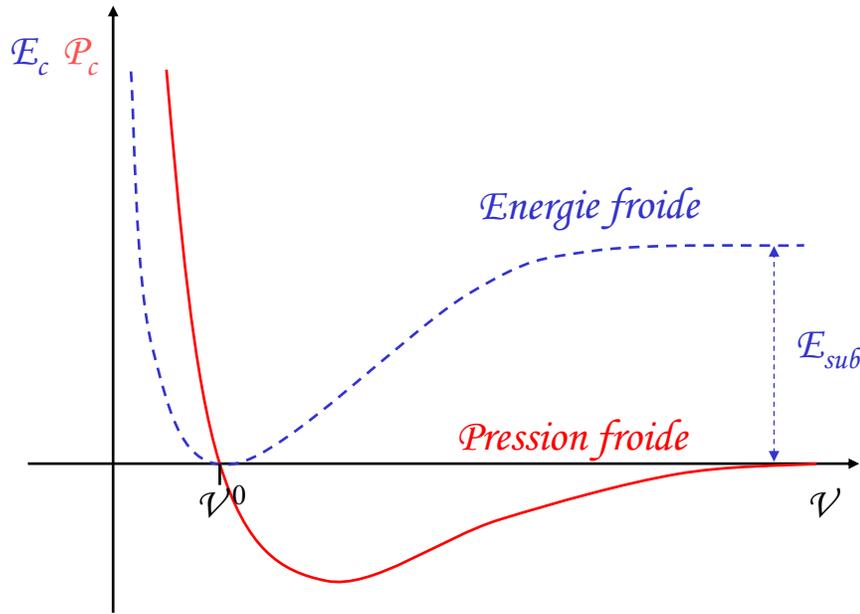


FIG. 3.1 – Courbes schématiques de la pression froide, P_c , et de l'énergie interne correspondante, E_c , en fonction du volume spécifique \mathcal{V} .

L'énergie élastique pour la phase solide lors de la phase de compression est de la forme :

$$\mathcal{F}_c^{(s)}(\mathcal{V}) = 3\mathcal{V}_c^0 \sum_{i=1}^5 \frac{a_i}{i} \left(\sigma_c^{i/3} - 1 \right) \quad (3.2)$$

où $\sigma_c = \frac{\mathcal{V}_c^0}{\mathcal{V}}$, \mathcal{V}_c^0 étant le volume spécifique à $P = 0$.

Cette forme permet d'atteindre asymptotiquement les conditions $\mathcal{F}_c^{(s)}(\mathcal{V}_c^0) = 0$ et ainsi $P_c(\mathcal{V}_c^0) = - \left. \frac{\partial \mathcal{F}_c^{(s)}}{\partial \mathcal{V}} \right|_T = 0$.

L'énergie froide de la phase liquide dans la région de compression ($\sigma_c \geq 1$) est donnée par l'équation précédente (3.2). Dans le cas de la phase liquide en détente ($\sigma_c < 1$), l'énergie est décrite par un polynôme de la forme :

$$\mathcal{F}_c^{(l)} = \mathcal{V}_c^0 \left[A \left(\frac{\sigma_c^i}{i} - \frac{\sigma_c^j}{j} \right) + B \left(\frac{\sigma_c^k}{k} - \frac{\sigma_c^j}{j} \right) \right] + E_{sub}$$

qui conduit à des valeurs tabulées de l'énergie de cohésion $E_c(\mathcal{V} \rightarrow \infty) = E_{sub}$ et satisfait la condition $P_c(\mathcal{V}_c^0) = 0$. Les paramètres A et B sont fixés par les conditions limites :

$$P_c = - \frac{\partial E_c}{\partial \mathcal{V}}, \quad B_c = - \frac{\partial P_c}{\mathcal{V} \partial \mathcal{V}}, \quad \text{et } B_{pc} = - \frac{\partial B_c}{\partial p}, \quad \text{lorsque } \sigma_c = 1$$

Il reste alors deux paramètres libres, j et k . Ils sont déterminés expérimentalement par la dépendance en température de la densité et de la vitesse du son dans le métal liquide.

3.2.2 Contribution thermique du réseau cristallin

La contribution du réseau cristallin à l'énergie libre dans la phase solide est définie par une expression de type Debye. L'approximation de Debye consiste simplement à considérer que l'énergie d'un phonon est proportionnelle à son impulsion. Elle est valide tant que le domaine est restreint aux phonons dits acoustiques, c'est à dire associés aux modes normaux acoustiques de petit vecteur d'onde. L'énergie libre associée à la contribution du réseau cristallin s'exprime ainsi par la formulation suivante :

$$\mathcal{F}_a^{(s)}(\mathcal{V}, T) = 3RT \ln \frac{\theta_c^{(s)}(\mathcal{V})}{T} \quad (3.3)$$

où R est la constante des gaz parfaits et où nous avons défini la température caractéristique $\theta_c^{(s)}$, de manière similaire à celle de Debye, par l'expression empirique suivante :

$$\theta_c^{(s)}(\mathcal{V}) = \theta_0^{(s)} \sigma_c^{2/3} \exp \left\{ \frac{(\Gamma_0^{(s)} - 2/3) (B_{(s)}^2 + D_{(s)}^2)}{B_{(s)}} \arctan \left[\frac{x B_{(s)}}{B_{(s)}^2 + D_{(s)} (x + D_{(s)})} \right] \right\} \quad (3.4)$$

où $x = \ln \sigma$. Les constantes $B_{(s)}$ et $D_{(s)}$ sont déterminées expérimentalement grâce à la dépendance en compression (σ_c) du coefficient de Grüneisen Γ : $\Gamma = d \ln \theta_c^{(s)} / d \ln \sigma_c$. $\Gamma_0^{(s)}$ est le coefficient de Grüneisen relatif à la dilatation thermique [77], tabulé à conditions ambiantes. Enfin, $\theta_0^{(s)}$ est déterminé par la condition sur l'entropie $S(\mathcal{V}_0) = 0$. Pour les fortes compressions, l'équation (3.4) fournit la bonne asymptote $\sigma^{2/3}$ correspondant au gaz parfait.

La contribution atomique à l'énergie libre dans la phase liquide est la somme de deux termes. Le premier rend compte des effets d'anharmonicité et le second correspond au comportement propre de la courbe de fusion :

$$\mathcal{F}_a^{(l)}(\mathcal{V}, T) = \mathcal{F}_t(\mathcal{V}, T) + \mathcal{F}_m(\mathcal{V}, T) \quad (3.5)$$

En phase liquide, la contribution des phonons à l'énergie libre ont une forme similaire à l'équation (3.3) mais avec une capacité calorifique C_a et une température caractéristique $\theta^{(l)}$ dépendant de la température et du volume :

$$\mathcal{F}_t^{(l)}(\mathcal{V}, T) = C_a(\mathcal{V}, T) T \ln \frac{\theta^{(l)}(\mathcal{V}, T)}{T}$$

Pour des températures suffisamment élevées, la barrière potentielle, qui augmente avec la densité, ne suffit plus empêcher les atomes de se mouvoir à travers le solide, de sorte que C_a ne correspond non plus aux degrés de liberté de vibration mais correspond aux degrés de translation et passe de $3R$ à $3R/2$. La capacité calorifique dans la phase liquide est alors comprise entre la

valeur solide (3.3) proche de $3R$ et la valeur correspondant à un gaz parfait $3R/2$. Son évolution dans cet intervalle est donnée par :

$$C_a(\mathcal{V}, T) = \frac{3}{2}R \left[1 + \frac{\sigma T_a}{(\sigma_c + \sigma_a)(T + T_a)} \right]$$

où les coefficients σ_a et T_a représentent la densité et la température caractéristiques de cette transition. Etant directement reliés à des paramètres expérimentaux, ils sont tabulés pour chacun des matériaux.

Le spectre vibrationnel défini par la variation de la température caractéristique reflète le changement progressif du coefficient de Grüneisen liquide $\Gamma^{(l)}$ de sa valeur à la limite solide $\Gamma^{(s)}$ de l'état condensé vers sa valeur asymptotique $2/3$ dans l'approximation d'un gaz parfait pour les hautes températures et les basses densités. Sous ces conditions, la température caractéristique s'exprime par la formule approximative suivante :

$$\theta^{(l)}(\mathcal{V}, T) = T_{sa} \sigma_c^{2/3} \frac{T_{ca} \theta_c^{(l)} + T}{T_{ca} + T}$$

où T_{ca} et T_{sa} sont des paramètres et où la température caractéristique dans la phase liquide est donnée de manière analogue à (3.4) :

$$\theta_c^{(l)}(\mathcal{V}) = \theta_0^{(l)} \exp \left\{ \frac{(\Gamma_0^{(l)} - 2/3) (B_{(l)}^2 + D_{(s)}^2)}{B_{(l)}} \arctan \left[\frac{x B_{(l)}}{B_{(l)}^2 + D_{(s)} (x + D_{(l)})} \right] \right\}$$

où B_l et D_l ainsi que $\Gamma_0^{(l)}$ sont déterminés expérimentalement par l'analyse d'ondes de chocs dans des échantillons solides et poreux. La constante $\theta_0^{(l)}$ est obtenue grâce à l'équation $\theta_a(0) = T_{ca}$.

Le second terme de l'équation (3.5) dans l'énergie libre atomique liquide, \mathcal{F}_m , assure les modifications du palier de fusion pour des variations volumiques et entropiques à pression ambiante. Il disparaît en phase gazeuse. La contribution de ce terme doit décroître lors d'une compression, puisque les différences de propriétés entre solide et liquide s'amenuisent pour les fortes pressions. Cet effet est pris en compte à travers la relation suivante :

$$\mathcal{F}_m(\mathcal{V}, T) = 3R \left\{ \frac{2\sigma_m^2 T_m^0}{1 + \sigma_m^3} \left[C_m + \frac{2A_m}{5} (\sigma_m^{5/3} - 1) \right] + (B_m - C_m)T \right\} \quad (3.6)$$

où $\sigma_m = \sigma_c / \sigma_m^0$ est la densité relative de la phase liquide sur la courbe de fusion. Les constantes A_m , B_m et C_m sont déterminées par les conditions d'équilibre le long de la courbe de fusion à $T = T_m$. Elles s'expriment en fonction de l'enthalpie libre de fusion ΔG_{s-l} et de l'entropie ΔS_{s-l} :

$$B_m = \frac{\Delta G_{s-l} + (P_l - P_{atm})\mathcal{V}}{3RT}; \quad C_m = B_m - \frac{\Delta S_{s-l} - S_m^0}{3R}; \quad A_m = \frac{(P_{atm} - P_l)\mathcal{V}}{3RT} - \frac{C_m}{2} \quad (3.7)$$

3.2.3 Contribution thermique du gaz d'électron

La contribution thermique électronique doit reproduire de la meilleure façon les dépendances des diverses relations asymptotiques. En ce sens, l'énergie libre, doit satisfaire à la fois le comportement du gaz d'électrons dégénérés à température modérée ($T \ll T_F$) et celui du gaz d'électron idéal à la limite maxwellienne quand T devient très grand :

$$\begin{cases} T \ll T_F & \mathcal{F}_e(\mathcal{V}, T) = -\frac{1}{2}\sigma^{-\Gamma_0}\beta_0 T^2 \\ T \rightarrow \infty & \mathcal{F}_e(\mathcal{V}, T) = \frac{3}{2}RZ \ln(\sigma^{2/3}T) \end{cases}$$

Avec Z le nombre atomique et R la constante des gaz parfaits. Afin de correctement reproduire ces deux cas limites, l'énergie libre est donnée par la relation suivante¹ :

$$\mathcal{F}_e(\mathcal{V}, T) = -C_e(\mathcal{V}, T)T \times \ln \left\{ 1 + \frac{\mathcal{C}_e(T)T}{2c_{ei}} \exp[-\Gamma_e(\mathcal{V}, T)] \right\} \quad (3.8)$$

où C_e est l'équivalent du coefficient de capacité calorifique généralisé, $\Gamma_e(\mathcal{V}, T)$ est l'équivalent du coefficient de Grüneisen électronique, c_{ei} est la capacité calorifique du gaz d'électrons et :

$$\begin{cases} \mathcal{C}_e(T) = \frac{2}{T^2} \int \left(\int_0^T \beta(\tau) d\tau \right) dT \text{ avec } \beta(T) = \beta_i + \left(\beta_0 - \beta_i + \beta_m \frac{T}{T_b} \right) \exp \left[-\frac{T}{T_b} \right] \\ c_{ei}(\mathcal{V}, T) = \frac{3}{2}R \left[Z + \frac{\sigma_z T_z^2 (1-Z)}{(\sigma + \sigma_z)(T^2 + T_z^2)} \right] \exp \left[-\frac{\tau_i}{T} \right] \text{ avec } \tau_i = T_i \exp \left[-\frac{\sigma_i}{\sigma} \right] \\ \Gamma_e(\mathcal{V}, T) = \Gamma_{ei} + \left(\Gamma_e^0 - \Gamma_{ei} + \Gamma_m \frac{T}{T_g} \right) \exp \left[-\frac{T}{T_g} - \frac{(\sigma - \sigma_e)^2}{\sigma \sigma_d} \right] \end{cases} \quad (3.9)$$

où la constante σ_z définit la densité caractéristique de la transition métal-isolant. La constante T_z correspond à la température de transition entre un gaz simplement ionisé et un plasma d'ionisation moyenne Z . La variable τ_i décrit la diminution du potentiel d'ionisation lorsque la densité du plasma augmente.

¹Naturellement, l'énergie libre $\mathcal{F}_e(\mathcal{V}, T)$ est de la même forme pour les phases solide et liquide.

3.3 Exemples et utilisations des EOS

L'ensemble des équations (3.1)-(3.9) permettent de définir complètement le potentiel thermodynamique pour l'essentiel des métaux sur la région du diagramme de phase qui intéresse notre étude. Ce modèle fait intervenir un grand nombre de coefficients qui sont, soit fixés par des données tabulées pour chacun des matériaux, soit utilisés comme paramètres d'ajustement pour une description optimale des lois théoriques et expérimentales.

L'intérêt d'une formulation semi-empirique comme celle-ci est de pouvoir fournir des résultats dans les régions pour lesquelles il n'y a pas de points expérimentaux et où les modèles théoriques ne fournissent qu'une estimation générale. Ceci s'applique particulièrement pour les courbes d'évaporation à hautes températures, proches du point critique. Elles sont pourtant primordiales dans le calcul des processus à hautes énergies. Nous verrons au cours du *chapitre 5* que ces données sont indispensables pour décrire correctement le processus d'ablation dans le cas des impulsions ultracourtes.

Nous allons maintenant présenter les courbes d'EOS obtenus dans un diagramme (T - E) pour les matériaux ayant été principalement étudiés dans ce travail. Il s'agit du cuivre et de l'aluminium qui sont deux métaux couramment utilisés puisque les échantillons sont faciles et peu coûteux à produire. De plus, l'aluminium sert de matériau standard pour les études des régions à haute pression et fait ainsi l'objet d'intenses recherches.

3.3.1 Equation d'état de l'Aluminium

Sur la figure (3.2), nous avons représenté dans un diagramme de phase (T - E) les isobares pour des pressions comprises entre la pression atmosphérique standard (10^5 Pa) et une pression typique (de 10 GPa) engendrée dans un métal assujéti à une impulsion laser. Les paliers de fusion et de vaporisation sont parfaitement visibles, pour les températures inférieures à la température critique. Le point critique est représenté par un point sur la figure.

Les caractéristiques de la phase liquide dense et fortement chauffée et les paramètres de la ligne de coexistence liquide-vapeur sont difficilement accessibles puisqu'ils requièrent un dispositif expérimental non-stationnaire de type choc laser. Mis à part la température d'évaporation à la pression standard, les informations sur les paramètres critiques sont uniquement disponibles sous la forme d'évaluations semi-empiriques. Les calculs ont permis de retrouver la valeur expérimentale de la température d'évaporation, $T_{vap}^0 = 2772$ K et des paramètres relatifs au point critique, $P_C = 0.57$ GPa, $T_C = 7222$ K, $\mathcal{V}_C = 1.24$ [g cm⁻³]⁻¹ et l'entropie $S_C = 4660$ J Kg⁻¹ K⁻¹. Ces paramètres sont en bon accord avec les données actuelles. Il est à noter que la dépendance en température de la densité et de la vitesse du son dans le liquide correspondent également aux données expérimentales [23].

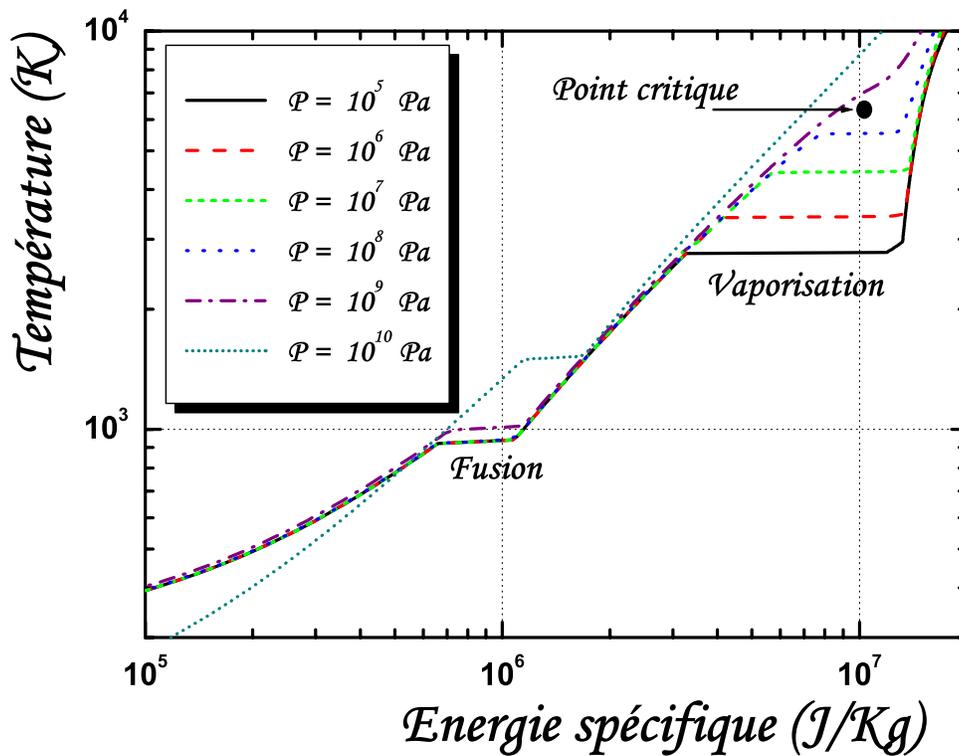


FIG. 3.2 – Equation d'état de l'Aluminium représentant des isobares dans un diagramme de phase. La température est donnée ici en fonction de l'énergie interne.

L'EOS de l'aluminium couvre l'ensemble des informations expérimentales connues sur les propriétés thermodynamiques de l'aluminium dans la région de hautes pressions et températures. Ainsi, la totalité des données expérimentales sont bien décrites par l'équation d'état obtenue. Celle-ci fournit de surcroît une prise en compte de la première ionisation et présente un comportement asymptotique justifié dans la limite des hautes températures et des grands volumes. Il en résulte que l'équation d'état obtenue est très bien adaptée à notre code hydrodynamique d'interaction.

3.3.2 Equation d'état du cuivre

Similairement au cas de l'aluminium, nous avons représenté sur la figure (3.3) les isobares (10^5 à 10 GPa) dans un diagramme de phase ($T-E$). Les commentaires sur l'EOS de l'aluminium sont valables également dans cette partie et nous ne donnerons que quelques détails propres au cuivre.

Les propriétés thermodynamiques pour une grande part du diagramme de phase à pressions modérées (typiquement inférieures à 100 GPa) sont déterminées à partir de nombreuses expériences de compression par choc sur des échantillons poreux. Les paramètres associés à la phase liquide et la position de la courbe d'évaporation ont été déterminés grâce à des données

expérimentales d'expansions isentropiques. Ces isotropes servent notamment à relier les paramètres de la courbe d'équilibre lors de leur entrée dans la région à deux phases liquide-gaz. Ils permettent un calcul complet des caractéristiques du liquide fortement chauffé et des plasmas denses. La valeur calculée de la température d'évaporation, $T_{vap}^0 = 2841$ K coïncide avec la valeur expérimentale. De plus, les paramètres relatifs au point critique sont également en bon accord avec les estimations disponibles : $P_C = 0.904$ GPa, $T_C = 7830$ K, $\nu_C = 0.44$ (g cm⁻³)⁻¹ et l'entropie $S_C = 1970$ J Kg⁻¹ K⁻¹.

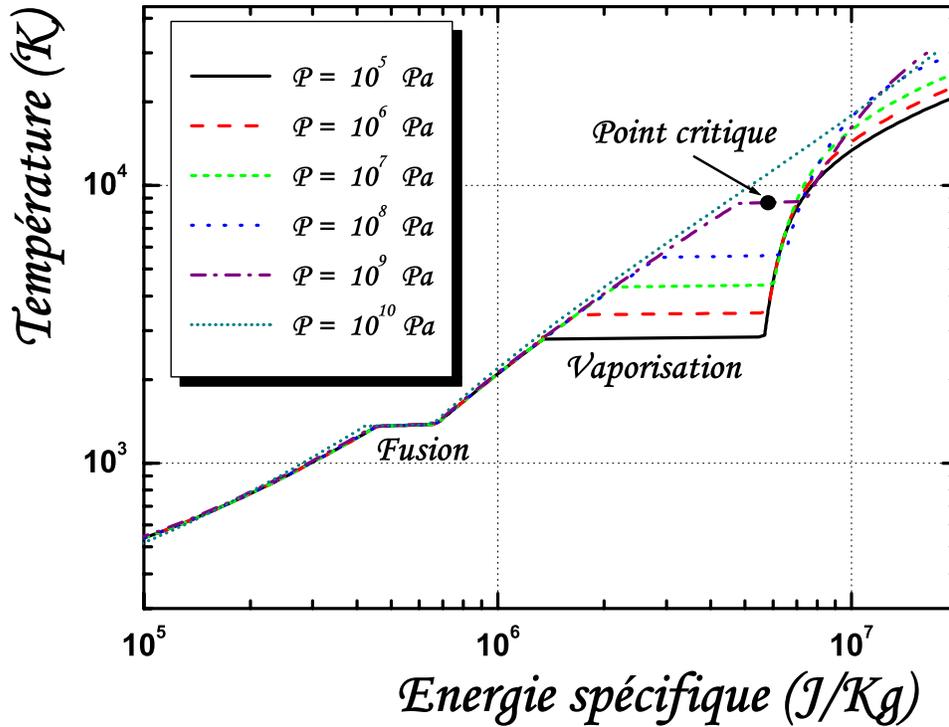


FIG. 3.3 – Equation d'état du cuivre représentant des isobares dans un diagramme de phase. La température est donnée ici en fonction de l'énergie interne.

3.3.3 Détermination des quantités dérivées

Le potentiel $\mathcal{F}(P, \nu)$ est incomplet au sens thermodynamique et il est nécessaire de connaître la température T ou l'entropie S en complément des équations thermodynamiques. La température a été choisie comme étant la quantité fixée comme donnée d'entrée dans l'EOS. La valeur de celle-ci est initialisée au début du calcul (300 K dans nos simulations). Elle évolue ensuite sous l'effet de la diffusion thermique, comme nous l'avons vu au *chapitre 2*, et sous l'effet de l'augmentation de l'énergie interne, en supposant que la capacité calorifique reste constante sur le pas de temps considéré. La capacité calorifique est définie et calculée comme découlant des

coordonnées atteintes dans l'équation d'état. Elle s'écrit en fonction de l'énergie E :

$$\left(\frac{\partial E}{\partial T}\right)_V = C_V \quad (3.10)$$

De même, nous aurons besoin dans le prochain chapitre de la vitesse de propagation des ondes de choc, qui dépendent des propriétés locales du métal. La célérité du son se calcule le long d'une courbe isentropique de l'EOS par la relation :

$$\left(\frac{\partial P}{\partial \rho}\right)_S^{1/2} = \left(\frac{1}{m} \frac{\partial P}{\partial \mathcal{V}}\right)_S^{1/2} = c_s \quad (3.11)$$

Les variables secondaires peuvent ainsi être déterminées en fonction des besoins de l'utilisateur pour un couple de coordonnées (E, V) ou (P, V) . Elles permettent de conserver les relations thermodynamiques existantes et de retrouver les propriétés connues du matériau.

Les données expérimentales sont difficilement accessibles pour certaines régions d'énergie et de pression. Il est donc intéressant de disposer d'EOS intégrant des modèles théoriques, ajustés par les données disponibles, pour décrire le comportement du matériau pour une sollicitation lui faisant parcourir une grande zone du diagramme de phase. Les EOS de Bushman-Lomonosov-Fortov sont remarquablement bien adaptées à une description globale des propriétés thermodynamiques des métaux dans les états solide, liquide, vapeur et plasma ainsi que dans les régions à deux phases solide-liquide et liquide-gaz. Elles vont nous permettre d'analyser la réponse hydrodynamique à la suite de l'impulsion laser avec le plus grand soin.

Les processus hydrodynamiques

L'absorption de l'énergie laser incidente s'effectue dans une fine couche en surface du matériau dont l'épaisseur est de l'ordre de l'inverse de la valeur du coefficient d'absorption linéaire. Le matériau est alors chauffé et un gradient de température, lié aux processus de diffusion (*cf chapitre 2*), s'établit dans le milieu. A cette répartition en surface de la température, les propriétés thermodynamiques du métal imposent une répartition en pression. Il s'agit de contraintes internes que le matériau va tendre à équilibrer sous la forme d'ondes de choc et de détente. La propagation de ces ondes au sein du solide est un phénomène dont les aspects mécaniques et thermodynamiques sont intimement liés. Ainsi, seule une connaissance suffisante de l'évolution des propriétés thermodynamiques, qui nous est ici fournie par les équations d'état multiphasés (*cf chapitre 3*), permet de donner une bonne estimation des états de contraintes atteints par le matériau.

Nous allons voir dans ce chapitre de quelle manière le métal réagit à la sollicitation mécanique de l'impulsion laser incidente. Pour cela, nous allons détailler le modèle d'équations hydrodynamiques, adaptées au cas des impulsions ultracourtes. Nous présenterons le modèle hydrodynamique que nous avons employé dans les simulations ainsi que son écriture nécessaire à une résolution correcte. Nous analyserons ensuite l'apparition des contributions à l'onde de choc dans le matériau ainsi que leur propagation au sein du milieu. Nous étudierons enfin le lien entre la forme des ondes de pression à l'intérieur du solide et les paramètres du modèle de dépôt d'énergie à deux températures. Ceci nous amènera à la proposition d'expériences spécifiques afin de comparer les formes expérimentales des ondes de choc à celles obtenues numériquement.

4.1 La dynamique Lagrangienne

Nous avons vu que deux variables thermodynamiques permettait de définir complètement l'état statique du système grâce à l'équation d'état du matériau. Pour déterminer l'évolution temporelle de ces coordonnées thermodynamiques, c'est à dire passer d'un état statique à un état dynamique, il faut nécessairement ajouter une variable dépendante de la position spatiale et du temps. Ainsi, la description mathématique de l'état d'un fluide en mouvement se fait par l'intermédiaire d'une fonction déterminant la distribution de la vitesse du fluide, et de deux autres variables quelconques de ses grandeurs thermodynamiques, par exemple la pression P et le volume V . C'est ce point que nous allons expliciter dans cette section en rappelant tout d'abord brièvement les équations d'Euler que nous exprimerons par la suite sous leur forme Lagrangienne pour se rapprocher de la formulation utilisée dans le calcul numérique.

4.1.1 Les équations d'Euler

En exprimant dans un premier temps la variation de la masse du fluide dans le volume comme la somme de petites variations de densité volumique de fluide, il vient classiquement :

$$\frac{\partial m}{\partial t} = \int_V \frac{\partial \rho}{\partial t} dV \quad (4.1)$$

D'autre part, la variation de quantité de matière dans un volume V s'accompagne nécessairement d'un flux à travers la surface orientée \vec{S} délimitant ce volume, de sorte que :

$$\frac{\partial m}{\partial t} = - \int_S \rho \vec{u} \cdot d\vec{S}$$

Si nous transformons l'intégrale de surface en une intégrale sur le volume par application du théorème de Gauss, l'expression précédente se traduit par :

$$\frac{\partial m}{\partial t} = - \int_V \vec{\nabla} \cdot (\rho \vec{u}) dV = - \int_V \frac{\partial}{\partial z} \rho u dV$$

En égalant cette dernière équation avec l'équation (4.1), et en stipulant que l'égalité obtenue entre les intégrales sur le volume de fluide doit être vérifiée quel que soit V , nous obtenons l'expression suivante qui décrit la conservation de la masse du fluide :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial z} \rho u = 0 \quad (4.2)$$

Si maintenant nous tenons compte de la force exercée par la pression P sur la surface orientée \vec{S} , délimitant le volume V d'une cellule, et en appliquant le théorème d'Ostrogradsky, nous obtenons :

$$\vec{F} = \oint_S P d\vec{S} = - \int_V \vec{\nabla} P dV$$

D'après la seconde loi de Newton, cette force contribue à la variation de l'impulsion \vec{p} :

$$\frac{d\vec{p}}{dt} = \frac{d}{dt} \left[\int_V \rho \vec{u} dV \right] = \vec{F}$$

En égalant les deux expressions précédentes, et en développant la différentielle de $\vec{u}(\vec{r}, t)$ sous la forme $\frac{d\vec{u}}{dt} = \frac{\partial \vec{u}}{\partial t} + \vec{u} \cdot \frac{d\vec{r}}{dt}$, nous obtenons l'équation d'Euler :

$$\rho \frac{\partial \vec{u}}{\partial t} + \rho \vec{u} \cdot \vec{\nabla} \cdot \vec{u} = -\vec{\nabla} P$$

Soit, en exprimant l'équation précédente dans notre système à une dimension :

$$\frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial z} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial P}{\partial z} \quad (4.3)$$

La troisième équation est équivalente à la première loi de la thermodynamique. Il s'agit de l'équation de conservation de l'énergie. Elle exprime le fait qu'à une variation d'énergie interne d'une particule de fluide donnée, il correspond un travail de compression exercé par les particules voisines. L'énergie d'une unité de volume de fluide s'écrit comme la somme de l'énergie cinétique $\rho u^2/2$ et de l'énergie interne ρe où e est l'énergie interne correspondant à une unité de masse du fluide. La variation temporelle de l'énergie du fluide se note sous la forme :

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{1}{2} \rho u^2 + \rho e \right) = \frac{d}{dt} \rho \varepsilon = -P dV$$

Ainsi, si nous supposons qu'il n'y a pas d'apports ou de pertes d'énergie de l'extérieur, nous obtenons l'équation de conservation de l'énergie :

$$\frac{\partial \varepsilon}{\partial t} + u \cdot \frac{\partial \varepsilon}{\partial z} + P \left[\frac{\partial V}{\partial t} + u \cdot \frac{\partial V}{\partial z} \right] = 0$$

qui se note également en posant l'opérateur $\frac{\mathcal{D}}{\mathcal{D}t} = \frac{\partial}{\partial t} + u \cdot \frac{\partial}{\partial z}$:

$$\frac{\mathcal{D} \varepsilon}{\mathcal{D}t} + P \frac{\mathcal{D} V}{\mathcal{D}t} = 0 \quad (4.4)$$

Nous venons d'établir les équations de conservation Eulériennes relatives à la dynamique d'une particule fluide. Nous allons maintenant formuler leur équivalence à leur forme Lagrangienne utilisée dans le code.

4.1.2 Le choix d'une approche Lagrangienne

Comme nous l'avons précédemment précisé dans ce travail, le code DELPOR calcule les propriétés du matériau à l'intérieur de mailles dont la masse reste constante au cours du temps. Cette approche Lagrangienne est la plus simple et la plus pratique pour décrire les flux dans un empilement présentant des discontinuités et des surfaces en contact aux frontières entre les différentes mailles. Cependant cette méthode n'autorise pas l'échange de matière d'une cellule à une autre. Par conséquent, la matière en expansion à la surface de la cible vers le milieu libre ne peut pas se fragmenter ou s'évaporer au sens de l'apparition de zones dépourvues de matière entre deux particules ou agrégats. Néanmoins, le système reste confiné dans les cellules originaires qui augmentent en volume et donc diminuent en densité, permettant ainsi une description macroscopique de notre système, et ce aux temps longs, après la séparation entre le gaz et le milieu dense. De plus, il est possible dans le code de générer des vides entre les mailles afin de produire un relâchement total des contraintes et de créer artificiellement les phénomènes de fracturation dans le solide, repoussant ainsi les limitations de l'approche Lagrangienne.

Il est à noter que des formulations Eulériennes ou les méthodes à macroparticules (*large particle method*) sont plus aptes à décrire l'évaporation en surface et les processus de dynamiques radiatives dans les torches à plasma¹ mais conduisent à de sérieuses difficultés pour décrire les propriétés du métal de manière continue au voisinage de la frontière entre le milieu gazeux et le milieu condensé.

4.1.3 Ecriture sous la forme Lagrangienne

Dans le cas où le maillage initial divisant l'ensemble du matériau en cellules a la possibilité de s'étirer et de se déformer au cours du temps, de manière à garder constante la masse de chacune des cellules, nous sommes dans le cadre d'une représentation Lagrangienne. Cette approche garantit la conservation de la masse exprimée par l'expression (4.2). La masse d'une cellule comprise entre les coordonnées z_n et z_{n+1} telles que $z_n \leq z \leq z_{n+1}$ s'écrit :

$$m = \int_{z_n}^{z_{n+1}} \rho(z) dz \quad (4.5)$$

La dérivée temporelle la mieux adaptée à un point fixe du maillage Lagrangien s'exprime sous la forme $\mathcal{D} / \mathcal{D} t$ que nous avons introduite précédemment.

Nous choisissons la variable massique m comme étant la quantité adaptée pour exprimer la coordonnée Lagrangienne. En introduisant le volume spécifique $\mathcal{V} = 1/\rho$ et en remarquant que

¹Pour des températures typiquement inférieures à une centaine d'eV, le plasma créé par laser est la source d'émission radiative de type transition de photorecombinaison (*e-libre - e-lié*) et bremsstrahlung (*e-libre - e-libre*).

$\partial/\partial z = \rho \partial/\partial m$, l'équation de conservation de la masse (4.2) s'écrit :

$$\frac{\partial \mathcal{V}}{\partial t} = \frac{\partial u}{\partial m} \quad (4.6)$$

Ainsi, d'après l'équation d'Euler (4.3) et en posant $\partial/\partial z = \rho \partial/\partial m$, l'équation de conservation de la quantité de mouvement est de la forme :

$$\frac{\partial u}{\partial t} = -\frac{\partial P}{\partial m} \quad (4.7)$$

Enfin, en remarquant que dans ce système de coordonnées, $\partial/\partial u = 0$ l'équation (4.4) de conservation de l'énergie devient :

$$\frac{\partial \varepsilon}{\partial t} = -P \frac{\partial \mathcal{V}}{\partial t} \quad (4.8)$$

En définitive, le système d'équations que nous serons amenés à résoudre par la suite pour une description complète de l'hydrodynamique est composé des équations (4.6) à (4.8).

4.2 Détermination de la pression électronique

Comme nous l'avons vu dans l'équation d'état BLF, l'énergie libre d'un métal s'écrit comme la somme de trois contributions. Une première contribution est attribuée aux ions du cristal, une seconde aux électrons libres, et une dernière constitue la contribution froide, correspondant à la composante élastique et valable à température nulle. Il en résulte que la pression s'écrivant $P^{tot} = -\left. \frac{\partial \mathcal{F}}{\partial V} \right|_T$ est également la somme de ces trois contributions :

$$P^{tot}(N_e, T_e, N_i, T_i) = P_e(N_e, T_e) + P_i(N_i, T_i) + P_c(N_e, N_i) \quad (4.9)$$

où P_e est la pression électronique, P_i la pression ionique, P_c la pression froide.

La contribution électronique à la pression totale du système devient non nulle. Nous avons rappelé et détaillé au *chapitre 2* les résultats thermodynamiques permettant de définir une équation d'état d'un gaz de fermions. Nous allons donner dans les paragraphes suivants l'expression de la contribution électronique à la pression totale.

4.2.1 Pression quantique à température nulle

Tout d'abord, il est intéressant de remarquer que la pression électronique est non nulle lorsque le gaz de fermions est complètement dégénéré. Dans ce cas, la densité volumique d'énergie du système U_e tend vers sa valeur minimale. Elle s'écrit en fonction de la densité d'électrons N_e et de l'énergie de Fermi \mathcal{E}_F :

$$U_e^0 = \int_0^{\mu_0=\mathcal{E}_F} n(\mathcal{E})\mathcal{E} d\mathcal{E} = A \int_0^{\mathcal{E}_F} \mathcal{E}^{3/2} d\mathcal{E} = \frac{2}{5} A \mathcal{E}_F^{5/2}$$

avec

$$\begin{aligned} A &= \frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2m_e}{\hbar^2} \right)^{3/2} \\ \mathcal{E}_F &= \frac{\hbar^2}{2m_e} (3\pi^2 N_e)^{2/3} \end{aligned} \quad (4.10)$$

Grâce à cette expression de l'énergie du niveau fondamental, il est facile de déterminer la pression quantique à température nulle $T_e=0\text{K}$. Elle s'exprime en fonction de la densité N_e du système électronique :

$$\begin{aligned} P_e^0 &= - \left. \frac{\partial [U_e^0 V]}{\partial V} \right|_T = \frac{2}{3} \frac{U_e^0}{V} = \frac{2}{5} \mathcal{E}_F N_e \\ &= \frac{2}{15} \frac{\hbar^2}{m_e} \left(\frac{4\pi^2}{2} \right)^{2/3} \left(\frac{3N_e}{2} \right)^{5/3} \end{aligned} \quad (4.11)$$

L'énergie de Fermi \mathcal{E}_F étant elle-même proportionnelle à $N_e^{2/3}$ d'après l'expression (4.10), il apparaît grâce à l'équation précédente que le gaz d'électrons à température nulle, c'est à dire complètement dégénéré, est doté d'une pression proportionnelle à $N_e^{5/3}$. Cette propriété est directement liée au principe d'exclusion de Pauli. En effet, puisque les particules ne peuvent pas toutes occuper simultanément les niveaux énergétiques les plus bas, les électrons sont en mouvement (appelé *mouvement de Fermi* [110]). Ainsi, plus la densité d'électrons augmente, plus les particules sont rapides, le nombre de choc contre des parois fictives augmente ; leur pression, ainsi que leur énergie, sont alors grandes au zéro absolu.

La contribution de la pression électronique à $T = 0\text{K}$ dans la pression totale est souvent contenue dans le terme de pression froide que nous avons défini au chapitre précédent. De plus, nous ne nous intéressons ici qu'à la surpression engendrée par le gaz d'électrons plus chaud que le réseau cristallin. Ainsi, de manière conventionnelle, les valeurs de pression que nous présenterons dans la suite ne sont pas absolues mais rééchelonnées par rapport à l'origine :

$$P_e(N_e, T_e) = P_e^{abs}(N_e, T_e) - P_e(N_e, 0)$$

4.2.2 Pression électronique

Lorsque nous avons défini les grandeurs thermodynamiques du système associé au gaz de fermions du métal dans le *chapitre 2*, nous nous étions contenté de donner l'expression de l'énergie interne, de la densité d'électrons ainsi que la capacité électronique en fonction de la température. Il était jusqu'alors question d'un élément de fluide sans contact direct ni échange avec un autre élément du fluide. Les variables thermodynamiques étaient définies à densité constante, par variation de la température du système. Nous sommes désormais confrontés au cas où le nombre de particules n'est pas fixe dans l'élément de volume de fluide considéré. La fonction thermodynamique adaptée au problème est la fonction grand potentiel \mathcal{J} définie par :

$$\mathcal{J}(T, \mu, V) = U_e V - \mu N_e - T_e S$$

Pour obtenir l'expression de \mathcal{J} en fonction de la température et du volume, il faut non seulement sommer sur l'ensemble des états microscopiques accessibles du système à N_e particules mais également sommer sur toutes les valeurs de N_e [33], et nous aboutissons après intégration par parties :

$$\begin{aligned} \mathcal{J} &= AV k_B T_e \int_0^\infty \mathcal{E}^{1/2} \ln \left[\frac{1}{1 + \exp(x - \eta)} \right] d\mathcal{E} \\ &= -\frac{2}{3} AV \int_0^\infty \frac{\mathcal{E}^{1/2}}{1 + \exp(x - \eta)} d\mathcal{E} \end{aligned}$$

Ainsi, par définition de la relation entre la pression et la fonction grand potentiel nous en déduisons l'expression de la pression électronique à la température T_e :

$$\begin{aligned} P_e \hat{=} - \left(\frac{\partial \mathcal{J}}{\partial V} \right)_{\mu, T_e} &= \frac{2}{3} U_e \\ &= \frac{2}{3} A (k_B T_e)^{5/2} \int_0^\infty \frac{x^{3/2}}{1 + \exp(x - \eta)} dx \end{aligned} \quad (4.12)$$

Nous pouvons d'ores et déjà remarquer que l'expression précédente de la pression électronique dépend de la température T_e et du potentiel chimique μ . Ce dernier paramètre (ou la variable réduite η) dépend implicitement des variables T_e et N_e par l'intermédiaire de l'expression (2.12). Ainsi, en éliminant μ au profit de N_e , il est possible de construire une équation d'état relative au gaz d'électrons donnant P_e et U_e en fonction des variables N_e et T_e .

Nous avons ainsi pu calculer les valeurs de la pression électronique en fonction de la température et de la densité. Pour éviter de calculer à chaque pas de temps et dans chacune des mailles de la simulation les intégrales de Fermi apparaissant dans la détermination de μ et de P_e , nous avons tabulé les valeurs de P_e sur une gamme de densités comprises entre $5 N_e^0$ et $10^{-5} \times N_e^0$, de la même manière que pour la densité. Ensuite, au cours de la simulation, il sera effectué des interpolations (à deux dimensions) pour déterminer P_e entre les deux valeurs les plus proches

des densités et des températures de référence encadrant N_e et T_e . Sur la figure (4.1), nous avons représenté les courbes d'isodensité dans un diagramme (P_e, T_e) .

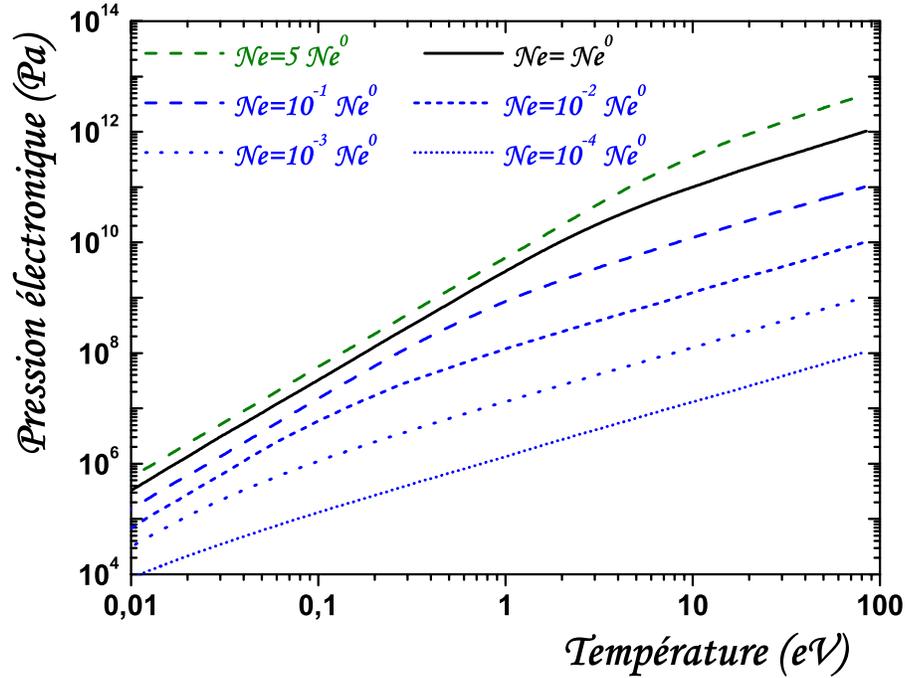


FIG. 4.1 – Pression du gaz d'électrons P_e pour différentes densités électroniques N_e dans le cas du cuivre. Les cas surdense, solide et sousdense sont représentés.

Nous sommes désormais en possession d'une équation d'état électronique indépendante de l'EOS BLF multiphasés. Nous avons vérifié que les valeurs de pressions électroniques étaient cohérentes avec celles fournies par les EOS bitempératures Sésame pour l'aluminium (modèle T) dans la gamme de température et densité qui nous intéresse ici. De même, elles sont relativement proches de la formulation empirique donnée par Zavestovskaya *et al* [165]. Nous allons voir comment se servir de cette dépendance de P_e en T_e et N_e pour estimer les effets du chauffage électronique sur la mise en vitesse du matériau.

4.2.3 Découplage des pressions

Nous avons vu au paragraphe (4.1.3) que l'hydrodynamique du système était complètement décrite sous la forme Lagrangienne par les équations (4.6) à (4.8). Il est néanmoins nécessaire de faire la distinction entre la variation d'énergie résultant d'un travail électronique et celle résultant de la pression ionique. En effet, les deux équations d'état, électronique et BLF, évoluent indépendamment et chacune des propriétés thermodynamiques des deux systèmes est calculée en fonction de l'énergie donnée par l'une et l'autre de ces EOS. Nous supposons ici que la force électrostatique s'exerçant entre les ions et les électrons est suffisante pour que le milieu reste électriquement neutre [166]. De ce fait, la densité ρ est commune aux deux espèces et n'évolue que par l'augmentation de volume de la cellule. Celle-ci est explicitement liée à la vitesse u de la cellule et nous n'utiliserons qu'une seule et même vitesse commune aux électrons et aux ions, décrivant un élément de fluide homogène mais évoluant par la somme des forces qui s'appliquent sur sa surface. Nous décomposons alors uniquement l'équation de conservation de l'énergie en deux équations séparées faisant intervenir un volume spécifique identique et nous imposons à la vitesse d'évoluer avec le gradient de la somme des pressions exercées. Le système à résoudre sous sa forme découlée s'écrit :

$$\begin{cases} \frac{\partial \varepsilon_e}{\partial t} = -P_e \frac{\partial \mathcal{V}}{\partial t}, & \frac{\partial \varepsilon_i}{\partial t} = -P_i \frac{\partial \mathcal{V}}{\partial t} \\ \frac{\partial u}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial m}(P_e + P_i), & \frac{\partial \mathcal{V}}{\partial t} = \frac{\partial u}{\partial m} \end{cases} \quad (4.13)$$

Nous devons apporter ici une précision sur les pressions utilisées dans la simulation afin de se soustraire de l'équilibre imposé par l'équation d'état BLF. Cette dernière fournit la valeur de la pression ionique P_i mais également la pression électronique à l'équilibre thermique avec les ions soit $P_e(T_i)$. Nous devons retrancher cette contribution électronique à l'équilibre à la pression totale afin de ne considérer qu'une seule fois le rôle de la pression électronique jusqu'à T_i . Ainsi, la pression totale s'écrit dans ces conditions :

$$P(T_e \neq T_i) = P_e(T_e) - P_e(T_i) + P_i(T_i) \quad (4.14)$$

Afin de résoudre ce type de système (4.13), une discrétisation particulière a dû être effectuée dans la simulation pour assurer une bonne stabilité de la solution. Sur le schéma (4.2) nous avons représenté la discrétisation du maillage en fonction de la coordonnée z . Nous y avons inséré les délimiteurs correspondant aux demi-maillages qui apparaissent uniquement dans la résolution numérique du calcul.

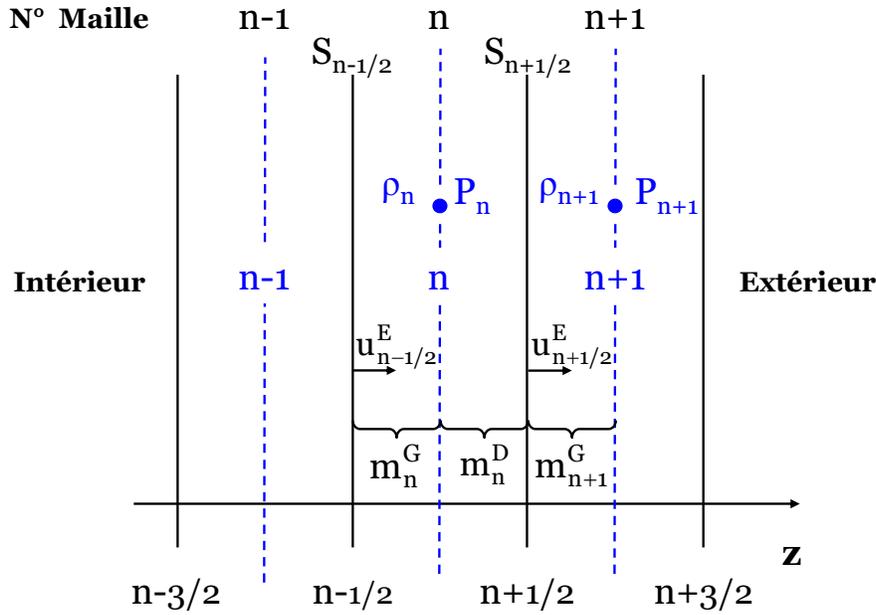


FIG. 4.2 – Schéma de la discrétisation du maillage utilisée pour la résolution du système d'équations hydrodynamiques.

Tout d'abord, définissons les masses à gauche et à droite de z_n , où nous avons tracé une paroi fictive qui partage équitablement la cellule en deux cellules de demi-masses identiques :

$$\begin{cases} m_n^G = \rho_n(z_n - z_{n-1/2}) \\ m_n^D = \rho_n(z_{n+1/2} - z_n) \end{cases} \quad (4.15)$$

Nous allons, à partir de ces expressions, introduire des incréments de vitesse subie par la paroi située en $z_{n+1/2}$ en raison des pressions appliquées, $P = P_e + P_i$, de part et d'autre de cette paroi séparant la maille n de la maille $n+1$. Nous notons $S_{n+1/2}$ la surface de séparation des mailles n et $n+1$, afin de généraliser notre approche monodimensionnelle ainsi que pour avoir une équation aux dimensions homogène. En réalité, $S_{n+1/2}$ est égale à l'unité dans la simulation (cas 1D). L'incrément de vitesse Δu_E de la paroi externe de la maille n entre le temps t et le temps $t + \Delta t$ s'écrit :

$$\Delta u_E = -\Delta t S_{n+1/2} \left[\frac{P_{n+1} - P_n}{m_{n+1}^G + m_n^D} \right]$$

Ainsi, la vitesse de la surface externe et sa position s'écrivent au temps $k + 1$:

$$\begin{aligned} u_{E, n+1/2}^{k+1} &= u_{E, n+1/2}^k + \Delta u_E \\ &= u_{E, n+1/2}^k - \Delta t S_{n+1/2} \left[\frac{P_{n+1}^k - P_n^k}{m_{n+1}^{G, k} + m_n^{D, k}} \right] \end{aligned} \quad (4.16)$$

$$\text{et } z_{n+1/2}^{k+1} = z_{n+1/2}^k + \Delta t u_{E, n+1/2}^{k+1} \quad (4.17)$$

Par définition de la vitesse interne, pour ne pas avoir de décollement avec la maille qui la suit, nous imposons pour $n > 1$:

$$u_{I, n+1/2}^{k+1} = u_{E, n-1/2}^{k+1}$$

Nous pouvons remarquer que dans ce schéma numérique, puisque l'approche Lagrangienne conserve la masse de chaque cellule au cours du temps, la somme des demi-masses gauche et droite de part et d'autre de la surface séparatrice ne varie pas non plus dans le temps, ce qui simplifie la prise en compte du gradient de masse de l'équation (4.7).

L'équation de conservation de la masse (4.6) est directement prise en compte dans ce schéma Lagrangien. Ainsi, la variation de volume spécifique $\frac{\partial \mathcal{V}}{\partial t}$ présent dans les équations (4.7) et (4.8) s'exprime en fonction de $\rho^k = \frac{m}{z_{n+1/2} - z_{n-1/2}}$:

$$\Delta \mathcal{V} = \frac{1}{\rho_n^{k+1}} - \frac{1}{\rho_n^k} = \frac{\rho_n^k - \rho_n^{k+1}}{\rho_n^{k+1} \rho_n^k} \quad (4.18)$$

Et nous pouvons facilement en déduire les variations des énergies internes électronique et ionique :

$$\begin{cases} \varepsilon_{e,n}^{k+1} = \varepsilon_{e,n}^{k+1} - P_{e,n}^k \frac{\rho_n^k - \rho_n^{k+1}}{\rho_n^{k+1} \rho_n^k} \\ \varepsilon_{i,n}^{k+1} = \varepsilon_{i,n}^{k+1} - P_{i,n}^k \frac{\rho_n^k - \rho_n^{k+1}}{\rho_n^{k+1} \rho_n^k} \end{cases} \quad (4.19)$$

Nous avons totalement exprimé les équations hydrodynamiques, découplées en température, sous leur forme discrétisée telle que nous les avons introduites dans le code DELPOR. Les lois de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie ont donc bien été respectées lors de la résolution de notre système sous sa forme Lagrangienne. Nous allons voir maintenant les résultats que nous avons obtenus avec ce découplage en pression électronique et pression ionique. Nous décrirons ensuite plus précisément les mécanismes de création et de propagation d'onde de choc afin de pouvoir faire le lien entre les phénomènes hydrodynamiques engendrés et le modèle de dépôt d'énergie utilisé. Nous verrons dans le prochain chapitre toute l'importance d'étudier cette onde de choc pour comprendre les processus conduisant à l'ablation en surface.

4.3 Propriétés des ondes de choc

Les mécanismes de génération et de propagation des ondes de compression et de décompression sont évidemment bien connus. Riemann a formulé dans les années 1860 les premiers modèles hydrodynamiques permettant de décrire l'existence et la propagation de ces ondes. Néanmoins, l'importance d'une étude des mécanismes liés à leur formation dans un solide est manifeste aussi bien du point de vue de la science fondamentale liée au comportement du matériau que des applications industrielles liées à l'endommagement ou à la détonation. Les résultats que nous obtiendrons par la suite nécessitent une bonne compréhension des mécanismes hydrodynamiques pour une bonne interprétation des processus induits, ceci afin de pouvoir dégager des relations entre les paramètres qui régissent les phénomènes d'éjection et de dommage qui nous intéressent.

4.3.1 L'onde de compression

Si nous considérons un solide chauffé de manière instantané et homogène en surface, l'accroissement de température va engendrer un accroissement de la pression en surface. Cette couche va se détendre vers la surface libre mais également comprimer l'élément de fluide immédiatement à proximité dans le solide. Ainsi, la pression de l'élément fluide augmente sous l'effet de diminution de densité à masse constante de l'élément voisin. De proche en proche, chaque élément de fluide va communiquer sa mise sous contrainte par augmentation de son volume, à une vitesse définie localement comme étant la vitesse du son définie en (3.10) :

$$c_s = \left(\frac{\partial P}{\partial \rho} \right)_S^{1/2} \quad (4.20)$$

Si maintenant nous imposons une répartition non homogène et dépendante du temps du chauffage en surface, plusieurs ondes vont se propager avec un retard continu. Lorsque le fluide est comprimé au passage de l'onde sonore, supposée isentropiquement, il va subir une augmentation de température. L'onde suivante se propagera ainsi plus vite, le fluide étant plus chaud. Il en résulte que les ondes successives finissent par se rattraper et forment une onde de compression d'intensité finie. L'onde atteint alors son intensité maximale. Ensuite, la température du matériau étant plus faible et décroissante avec la profondeur, elle va ralentir et s'élargir jusqu'à son atténuation complète.

Nous reportons sur la figure (4.3) la dépendance temporelle de l'évolution des pressions dans un échantillon de cuivre à la suite d'une impulsion laser de 10 J cm^{-2} et d'une durée de 150 fs. Nous avons superposé l'évolution de l'intensité de la pression pour trois profondeurs dans le matériau, $1 \mu\text{m}$, $5 \mu\text{m}$ et $10 \mu\text{m}$.

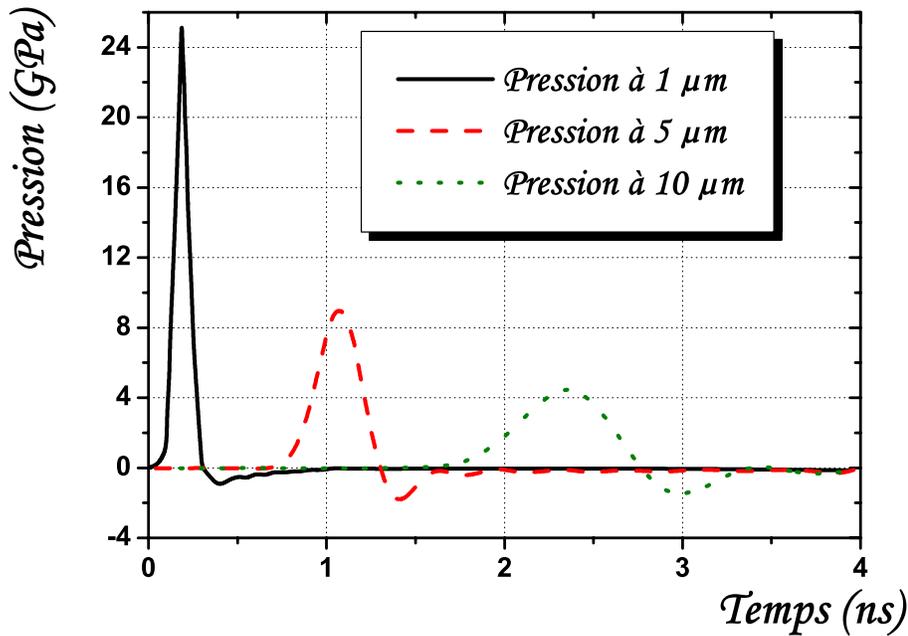


FIG. 4.3 – Propagation d’une onde de choc à différents instants dans une cible de cuivre pour une fluence de 10 J cm^{-2} .

Sur la figure (4.3), il apparaît clairement une diminution de l’intensité maximale accompagnée d’un élargissement du choc lors de sa traversée dans le matériau. Chacun des chocs est suivi par une zone de contrainte négative, il s’agit de l’onde de détente que nous allons détailler dans ce prochain paragraphe.

4.3.2 L’onde de détente

A l’inverse, les détentes successives abaissent la température du fluide. De plus, contrairement au cas de l’onde de compression, elles se propagent de plus en plus lentement et ne se rattrapent plus. Une onde de détente discontinue ne peut pas se former dans ces conditions.

Il faut savoir que si l’onde de détente est due à l’émergence d’une onde de compression à une surface libre, la forme définitive de la répartition des pressions apparaît lors de l’émergence. Néanmoins, l’existence d’une onde de choc de détente et non d’une onde de décompression progressive est due au phénomène de transition de phase. En effet, la formation des ondes de détente est intimement liée à la courbure des isentropes au voisinage du point critique, ou tout au moins proche de la transition de phase liquide-gaz au voisinage de la courbe d’ébullition comme nous l’avons représenté sur le diagramme (4.4). L’onde de détente discontinue ne peut se présenter que le long d’une adiabatique, dans le plan $(P-V)$, lorsque la courbure est négative :

$$\left(\frac{\partial^2 P}{\partial V^2} \right)_S < 0 \quad (4.21)$$

Lorsque le signe de cette dérivée est positif, le choc est compressif. Cependant, dans certaines régions du diagramme de phase ($P-V$), au voisinage du point critique mais dans la région à une phase, $\left(\frac{\partial^2 P}{\partial V^2}\right)_s$ peut devenir négatif. Ce phénomène est connu comme la perte de convexité des isentropes et est indépendante de l'équation d'état utilisée, et ceci pour la plupart des matériaux. En 1942, Bethe a montré que ce phénomène apparaissait lorsqu'une expansion isentropique s'accompagne d'une transition d'un état à deux phases à un autre où seule une phase subsiste à condition que la chaleur spécifique soit suffisamment élevée [12]. Plus récemment, Tribelsky et Anisimov ont énoncé une théorie phénoménologique sur les solutions des équations d'onde de raréfaction (équations de Burgers) lors de la perte régulière de convexité des isentropes [151]. Ils font remarquer qu'en dépit de l'importance et de l'ancienneté du problème, il n'avait jamais été mentionné le fait que cette région, requise pour l'obtention d'onde de raréfaction, n'occupe qu'une faible zone dans le diagramme ($P-V$). Il en résulte que ces ondes sont toujours faibles, sinon l'onde de choc sortirait du domaine d'isentropes à caractère convexe.

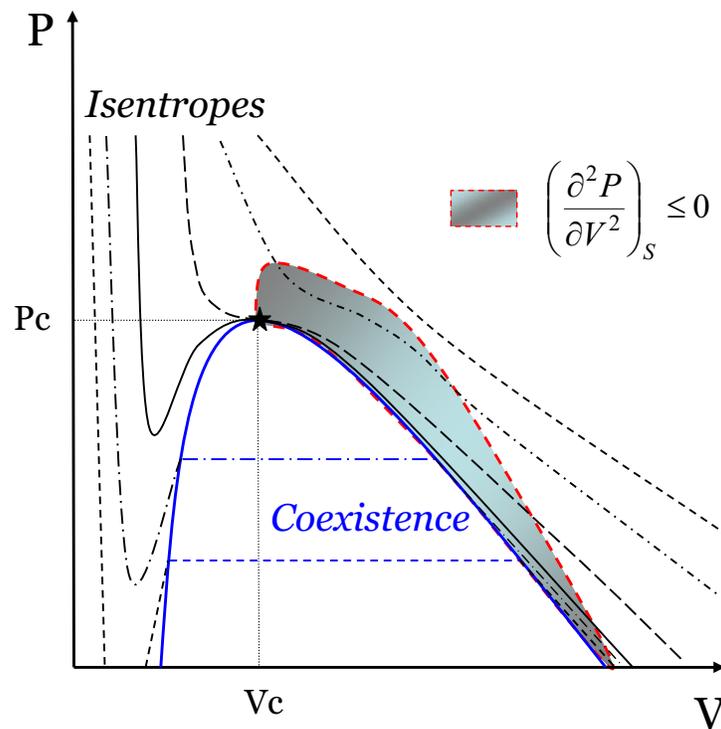


FIG. 4.4 – Représentation des isentropes dans un diagramme ($P-V$). La perte de convexité des isentropes, créatrice d'une onde de détente, apparaît principalement au voisinage du point critique, symbolisé par \star sur la figure.

4.3.3 Comportement élastoplastique : Modèle de Steinberg-Cochran-Guinan

Un solide est un corps qui résiste aux déformations, contrairement aux fluides. Son comportement élastoplastique est pris en compte à travers la partie symétrique du tenseur des déformations \mathcal{S}_{ij} , qui intervient dans l'équation de la dynamique. Ainsi, la contrainte Σ subie par le matériau se compose de la pression hydrostatique et de la déformation, soit $\Sigma = -P + \mathcal{S}$ où \mathcal{S} s'exprime en fonction de la variation de volume ΔV et du module de cisaillement \mathcal{G} de telle sorte que $\mathcal{S} = \frac{4}{3} \mathcal{G} \left(\frac{\Delta V}{V} \right)$. La limite au comportement élastique se produit lorsque la pression P dépasse la valeur seuil $2/3 \mathcal{Y}_{max}$ où \mathcal{Y} représente le module d'élasticité. Alors, pour des pressions supérieures, le comportement du matériau devient parfaitement plastique et \mathcal{S} est fixé à la valeur constante $\mathcal{S} = 2/3 \mathcal{Y}_{max}$.

Les grandeurs \mathcal{G} et \mathcal{Y} varient en fonction de l'état thermodynamique du matériau. L'évolution de ces paramètres en fonction de la pression et de la température du cristal a été prise en compte à travers le modèle de Steinberg-Cochran-Guinan dit (*SCG*), adapté à notre gamme de contrainte [141]. Ce modèle a été élaboré pour reproduire le comportement sous choc des solides métalliques. Le module de cisaillement \mathcal{G} s'écrit en fonction de la pression P , de la température T et du facteur de compression $\eta = V/V^0$:

$$\mathcal{G} = \mathcal{G}_0 \left[1 + \left(\frac{\mathcal{G}'_P}{\mathcal{G}_0} \right) \frac{P}{\eta^{1/3}} + \left(\frac{\mathcal{G}'_T}{\mathcal{G}_0} \right) (T - 300) \right] \quad (4.22)$$

De même, la dépendance en pression, température et de la déformation plastique \mathcal{D} , le module d'élasticité \mathcal{Y} prend une forme similaire :

$$\mathcal{Y} = \mathcal{Y}_0 [1 + \beta(\mathcal{D} + \mathcal{D}_i)]^n \left[1 + \left(\frac{\mathcal{Y}'_P}{\mathcal{Y}_0} \right) \frac{P}{\eta^{1/3}} + \left(\frac{\mathcal{Y}'_T}{\mathcal{Y}_0} \right) (T - 300) \right] \quad (4.23)$$

où \mathcal{D}_i est la déformation plastique initiale. \mathcal{Y} ne doit toutefois pas dépassé la limite d'écoulement maximale \mathcal{Y}_{max} et ainsi obéir à la relation :

$$\mathcal{Y}_0 [1 + \beta(\mathcal{D} + \mathcal{D}_i)]^n \leq \mathcal{Y}_{max}$$

Les paramètres \mathcal{G} et \mathcal{Y} sont fixés à 0 pour des températures supérieures à la température de fusion dont la dépendance en densité est définie par :

$$T_m = T_m^0 \exp \left[2\alpha \left(1 - \frac{1}{\eta} \right) \right] \eta^{2(\gamma_0 - \alpha - 1/3)}$$

Nous avons récapitulé dans un premier tableau la valeur des paramètres fixés dans les simulations pour des métaux tels que l'aluminium et le cuivre (4.1).

Paramètre	\mathcal{G}_0	$\frac{\mathcal{G}'_P}{\mathcal{G}_0}$	$-\frac{\mathcal{G}'_T}{\mathcal{G}_0}$	\mathcal{Y}_0	\mathcal{Y}_{max}
Matériau/Unité	(GPa)	(GPa) ⁻¹	K ⁻¹	(GPa)	(GPa)
Aluminium	27.6	6.5×10^{-2}	6.2×10^{-4}	0.29	0.68
Cuivre	47.7	2.8×10^{-2}	3.8×10^{-4}	0.12	0.64

TAB. 4.1 – Valeurs numériques des paramètres utilisés dans les équations constitutives.

De même, nous complétons le tableau précédent par un second regroupant les autres paramètres ajustables dans le modèle (4.2) :

Paramètre	α	β	γ_0	n	T_m^0
Matériau/Unité	(<i>s.u.</i>)	(<i>s.u.</i>)	(<i>s.u.</i>)	(<i>s.u.</i>)	(K)
Aluminium	1.5	125	1.97	0.1	1220
Cuivre	1.5	36	2.02	0.45	1790

 TAB. 4.2 – Valeurs numériques des paramètres utilisés dans les équations du modèle *SCG*.

Notons simplement que les chocs engendrés dans les cibles dépassent rapidement les valeurs maximales de la limite élastique, inférieures à 1 GPa. Ce modèle d'élasto-plasticité présente donc un intérêt dans les premiers instants de l'interaction, ou pour des très faibles énergies incidentes, ou enfin dans les couches profondes du matériau où le choc laser est amoindri.

4.3.4 Détail des chocs engendrés dans la cible

Le découplage en pression a une forte influence dans les premiers instants suivants l'interaction. Il est évidemment prépondérant lorsque le système a atteint son plus haut degré de déséquilibre. Au terme de l'irradiation laser, le gaz d'électrons chauds est fortement comprimé à l'intérieur du solide froid. La pression électronique augmente intensément avec le chauffage dû à l'impulsion laser. Par contre, la pression ionique reste proche de la pression ambiante, 10^5 Pa puisque les ions ne sont encore pas chauffés. De la même manière que les températures électroniques et ioniques s'équilibrent à la fin de la relaxation électron-phonon, les pressions tendent aussi à s'égaliser. Pour illustrer ce propos, nous avons représenté sur la figure (4.5) le déséquilibre en pression dans un échantillon d'aluminium jusqu'à la relaxation totale en surface de l'énergie des électrons vers les ions. Pour cela, nous avons tracé les pressions ioniques seules en fonction de la profondeur dans le métal et à différents temps, ainsi que les pressions totales, électroniques et ioniques.

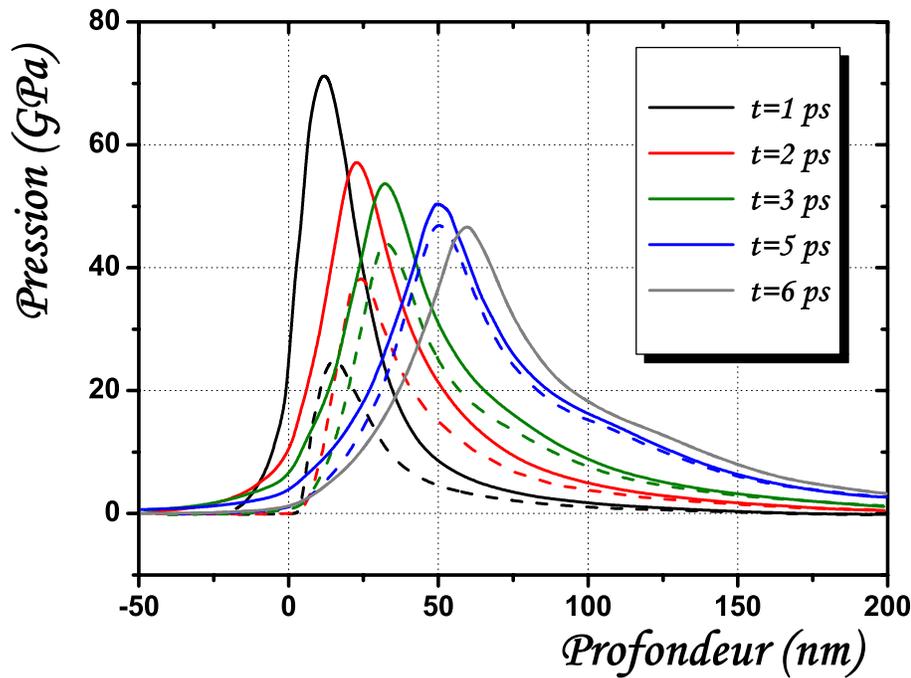


FIG. 4.5 – Evolution de la pression dans une cible d'aluminium en fonction du temps. Les courbes en pointillé correspondent à la pression ionique seule alors que les courbes pleines représentent la pression totale électronique et ionique. Fluence = 5 J cm^{-2} , $\tau_L = 150 \text{ fs}$, $\lambda_L = 800 \text{ nm}$.

Nous pouvons ainsi constater toute l'importance, tout au moins aux temps courts, de la prise en compte de cette pression induite par les électrons. Des pressions de plusieurs dizaines de GPa sont atteintes pour une fluence laser de 5 J cm^{-2} . D'après ce réseau de courbes, nous pouvons en déduire que le maximum en pression apparaît pendant la phase de relaxation électron-ion et non après. Nous allons maintenant étudier plus spécialement l'évolution temporelle de ces pressions, qui est implicitement liée à l'évolution spatiale puisqu'elles se propagent dans le matériau sous la forme d'ondes de chocs.

Sur la figure (4.6), nous avons représenté dans un diagramme temps-espace l'évolution de la pression dans le matériau jusqu'à 200 ps, pour des conditions d'irradiations similaires à l'exemple précédent. Des pressions de l'ordre de quelques dizaines de GPa se distinguent dans deux régions du diagramme. La première apparaît pendant les premières picosecondes, au moment où le gaz d'électrons est le plus chaud à la surface du cristal, sur une épaisseur de quelques dizaines de nm. La contribution électronique est alors prédominante dans le terme de pression totale dans cette zone. Cette précompression électronique engendre une détente du matériau et les ions voient leur volume augmenter à température ambiante puisque, le temps de relaxation électron-phonon n'étant pas atteint, le transfert d'énergie des électrons vers les ions n'a pas eu le temps de s'effectuer complètement. A ce stade, la surface commence à se détendre et nous pouvons voir, malgré l'échelle logarithmique en abscisse, une mise en vitesse linéaire du matériau.

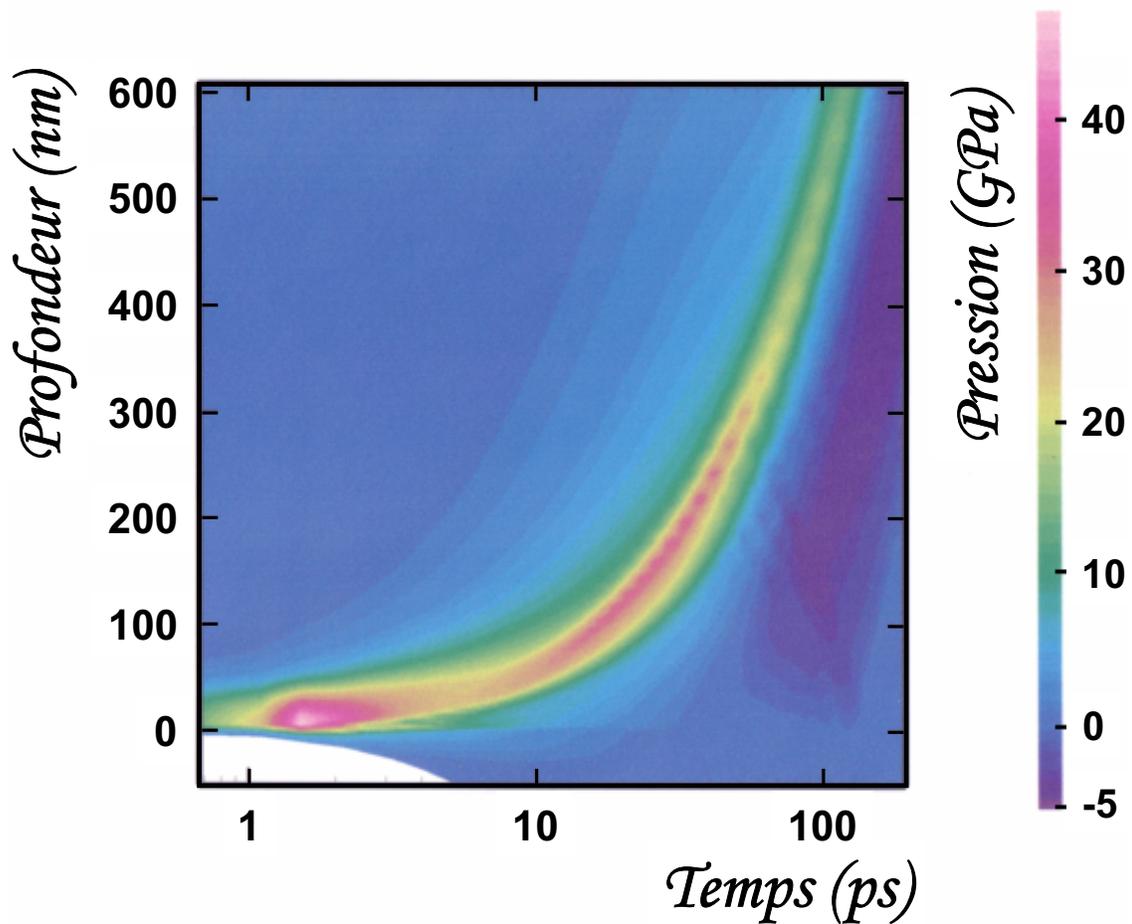


FIG. 4.6 – Propagation d’une onde de choc à travers une cible de Cuivre pour une fluence de 10 J cm^{-2} . Une onde de précompression électronique précède l’onde de choc principale, de type ionique. L’onde de détente apparaît plus tard (en violet) et se propage à l’arrière de l’onde de compression.

La phase de compression électronique diminue très rapidement avec la baisse de l’énergie électronique localisée en surface. En effet, la conduction de l’énergie électronique vers le gaz d’électrons plus froid en profondeur ainsi que le couplage ($e-ph$) tendent à abaisser et répartir l’énergie interne des électrons, diminuant alors la valeur de la pression électronique maximale et équilibrant le gradient de pression. Ainsi, au terme d’une dizaine de picosecondes, le choc de type électronique s’amenuise et laisse place à l’onde de choc principale dont la propagation est clairement visible sur la figure. Il s’agit là de la seconde montée en pression du matériau, elle est cette fois de type ionique. La pression ionique augmente avec le chauffage progressif du réseau cristallin dû au couplage ($e-ph$). Son maximum est atteint au bout de plusieurs dizaines de picosecondes lorsque le matériau en profondeur subit à la fois la compression de la matière se détendant en surface et sa propre compression induite par la montée en température locale à la suite de la relaxation complète de l’énergie venant des électrons.

L'onde de choc se propage alors en s'affaiblissant au cours de sa traversée dans le métal. Elle atteint encore une douzaine de GPa à 600 nm de profondeur. Plus tardivement, c'est à dire à droite de l'onde de choc sur la figure (4.6), une onde de contrainte négative suit l'onde de choc principale. Cette onde de détente se propage également dans le matériau, rattrapant même l'onde de compression et grignotant ainsi la queue de l'onde de choc. Elle atteint environ -5 GPa, ce qui, il faut le noter, est supérieur à la tension de rupture classique dans le cuivre solide. Nous détaillerons plus précisément ce point dans le paragraphe (5.3.4) du prochain chapitre.

Ainsi, nous venons de voir comment le déséquilibre thermique électron-ion influençait la mise sous contrainte du matériau. Le modèle hydrodynamique utilisé sous sa forme Lagrangienne gère la propagation des ondes de choc au sein de l'empilement de maille au cours de la simulation. Nous avons ainsi mis en évidence l'existence de deux ondes de choc consécutives, la première électronique laissant place à la deuxième, ionique, en quelques picosecondes. Ensuite, par conservation de la quantité de mouvement, l'onde de décompression est suivie par une onde de détente, qui elle aussi se propage dans le matériau.

4.4 Perspectives : mesure de pression interne dans la cible

Nous avons représenté sur la figure (4.7) plusieurs formes obtenues pour l'onde de choc en ayant fait varier les valeurs des paramètres du modèle à deux températures. Ainsi, nous avons superposé une courbe correspondant aux paramètres standard du M2T, utilisés dans l'ensemble des simulations, une correspondant à une augmentation de la conductivité et enfin une correspondant à l'augmentation du facteur de couplage (*e-ph*).

Dans les premières centaines de picosecondes, la croissance de la contrainte interne est directement liée à la profondeur de chauffage. L'augmentation du facteur de couplage conduit à un gradient thermique plus raide et ainsi à des températures plus faibles à 1 μm de profondeur en comparaison avec les deux autres situations. Il en résulte une pression amoindrie dans ce cas. L'intensité maximale de l'onde de choc se propageant à partir de la surface, atteint 1 μm de profondeur au bout d'environ 200 ps. L'augmentation du facteur de couplage accélère le transfert d'énergie des électrons vers les ions ce qui provoque une plus grande compression. Inversement, une conductivité thermique accrue a tendance à étaler le profil spatial d'énergie et conduit à une pression moins importante. La durée du choc et son intensité représentent une bonne signature des effets opposés de la conductivité et du facteur de couplage.

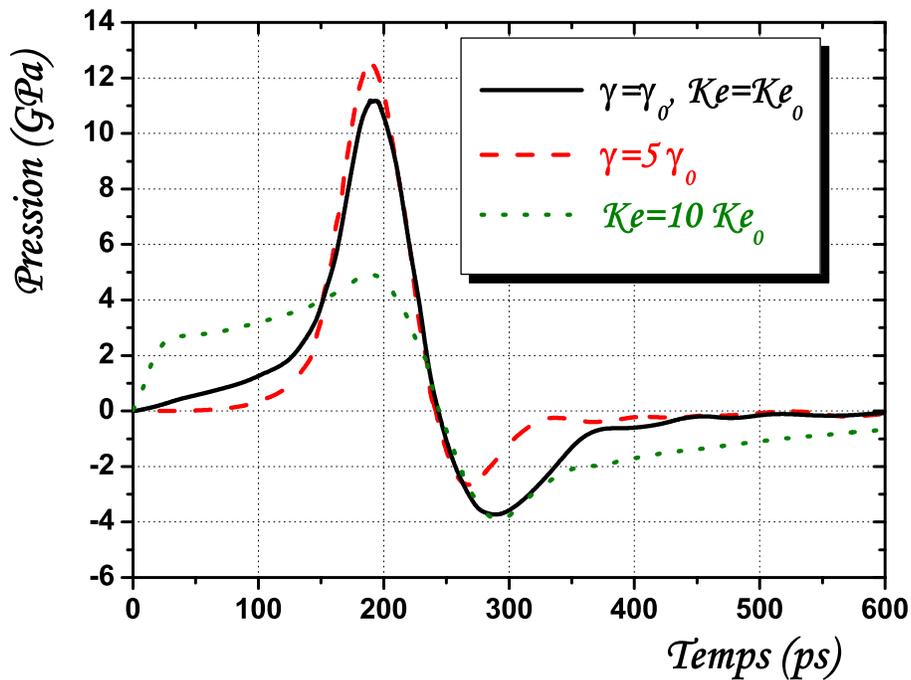


FIG. 4.7 – Influence des paramètres du Modèle à Deux Températures sur la forme de l'onde de choc dans une cible de cuivre. La courbe correspondant aux paramètres standard est représentée par un trait plein, alors que celles correspondant à une augmentation de la conductivité K_e et une augmentation du facteur de couplage électron-phonon γ sont respectivement représentées par des courbes pointillée et hachée.

Les simulations suggèrent que les contraintes induites en profondeur par les impulsions laser ultracourtes fournissent des informations sur l'évolution dynamique de l'état du matériau qui pourraient être comparées avec des mesures expérimentales de pression. L'intérêt principal de l'étude de l'évolution temporelle des pressions est que celle-ci contient l'ensemble des informations relatives à la physique de l'interaction mais exprimées sur des échelles de temps plus importantes. Ainsi, les caractéristiques du déséquilibre électron-ion sont encore visibles sur des échelles de temps plus longues, loin dans le matériau. Ces mesures seraient susceptibles de fournir une voie intéressante pour analyser les distortions de la matière sur des échelles de temps de l'ordre de la picoseconde. Comme méthode possible pour mesurer les pressions, nous pouvons envisager des mesures mécaniques par capteurs piézoélectrique [124], ou optiques par Interférométrie Doppler Laser [18] ou VISAR [149]. Dans le premier cas, nous pouvons envisager une jauge piézoélectrique à quartz sur laquelle il serait mis un dépôt ou une feuille du métal que l'on souhaite étudier. Une relation relie alors la tension aux bornes de la résistance de charge et la différence des contraintes appliquées en face avant et arrière du capteur. Le coefficient de réponse est alors déterminé par étalonnage préalable comparativement à la réponse du quartz dans les mêmes conditions de sollicitation.

Dans ce chapitre, nous avons décrit les mécanismes et développé les équations liées à l'établissement des ondes de choc et à leurs propagations dans le solide. Si l'onde de compression chauffe le matériau en profondeur par densification sur son passage, l'onde de détente est, elle, responsable de l'éjection très rapide du fluide en surface. L'importance des pressions et contraintes en tension mises en jeu témoigne de la rapidité du chauffage par le transfert d'énergie (*e-ph*). La dynamique et la forme prises par ces distributions de pression sont marquées par les mécanismes transitoires qui ont lieu au début de l'interaction. Ainsi, nous avons fait apparaître un lien entre les paramètres du modèle à deux températures et la forme du choc, exprimant ainsi à plus long terme le caractère imputable au déséquilibre immédiat suivant l'interaction. Une analyse précise des ondes de choc pourrait ainsi fournir des informations sur le comportement du matériau au cours du processus de relaxation d'énergie. Nous avons alors mis en évidence l'intérêt d'effectuer des mesures de vitesse arrière d'un échantillon pour étudier l'impact d'un déséquilibre thermique sur la déformation du métal.

Détermination de l'ablation de matière

Les dommages produits par un faisceau laser irradiant un échantillon métallique font l'objet de nombreuses publications dédiées et de conférences organisées régulièrement. Les diverses formes d'éjection de la surface du matériau se regroupent sous le terme d'ablation. Il comprend plusieurs phénomènes tels que l'évaporation, la nucléation, la fracture solide voire même l'émission d'électrons. Les mesures d'ablation présentent un net avantage par rapport aux autres mesures accessibles pour déterminer les causes de l'endommagement puisqu'il s'agit d'une mesure statique et facilement reproductible. Ainsi, l'observation des dommages produits sur l'échantillon constitue un bon moyen de recueillir des indices sur les mécanismes de formation d'un cratère. En particulier, l'analyse de la profondeur d'ablation est une première source utile d'informations qui dévoile la nature de l'interaction laser-matière et ses conséquences sur l'évolution des propriétés de la cible.

Dans ce chapitre, nous allons présenter les résultats d'ablation obtenus au moyen des sources laser ultracourtes. Après un exposé succinct des propriétés principales associées à ce type d'impulsions, nous présenterons les procédés expérimentaux qui ont été nécessaires pour effectuer des expériences d'ablation. Nous détaillerons alors le montage expérimental ainsi que la méthode de diagnostic de la profondeur ablatée. Au vu des caractéristiques particulières de ce type d'interaction, nous détaillerons les différentes sortes de mécanismes, envisagées dans la littérature, pouvant occasionner l'éjection de la matière en surface. Ceci nous amènera à décrire les processus physiques associés aux changements de phase afin d'établir un lien entre les observations expérimentales et les phénomènes reproduits au cours d'une simulation. De là, nous pourrions déterminer une limite fictive à l'intégrité du fluide décrit et ainsi utiliser ce critère d'ablation pour donner une dépendance en fluence de la quantité de matière ablatée par impulsion. Nous présenterons alors une comparaison entre les résultats expérimentaux spécifiques et les courbes d'ablation numériques prédictives. Celle-ci donnera également lieu à une étude paramétrique.

5.1 Originalité des applications des sources ultrabrèves

Le domaine d'applicabilité de l'interaction laser-métal est relativement large et comprend l'ablation, le perçage, la coupe et la soudure. Cette technologie présente des intérêts majeurs tels que la précision et la forte cadence des procédés tout en évitant les contacts mécaniques entre l'outil et l'échantillon. Depuis quelques années, les lasers femtosecondes se sont révélés être très intéressants pour les applications industrielles de micro-usinage dérivées de l'ablation par laser. Ces applications ont été, de surcroît, dopées par les progrès des technologies ultrabrèves et en particulier grâce au développement de l'amplification à dérive de fréquence permettant de réaliser des systèmes laser ultracourts pour des études à vocation industrielle.

Il était dans un premier temps supposé que l'énergie déposée par le laser ultracourt n'avait pas le temps de se répartir dans le métal irradié, limitant ainsi l'énergie thermique résiduelle dans la cible. Cette supposition était directement liée aux caractéristiques particulières des ablations réalisées par les sources d'impulsions ultrabrèves. L'état de surface au voisinage de l'interaction est en effet beaucoup plus propre grâce à ce type d'impulsion par rapport aux impulsions plus longues. Cependant, les observations montrent des modifications structurales autour de la zone irradiée, tendant à suggérer que l'énergie thermique restant dans le matériau n'est pas négligeable [93]. Pour aller plus loin dans l'étude des effets thermiques résultants de l'interaction, il est nécessaire de connaître les processus responsables de l'éjection de matière et leurs régimes d'existence.

Nous pouvons citer, parmi les nombreuses études expérimentales effectuées sur le sujet, les travaux de Chichkov *et al* sur la dépendance en durée d'impulsion de l'ablation [27]. Ils ont montré expérimentalement que les faibles durées d'impulsion permettaient une meilleure précision de l'ablation. Les bords des trous qu'ils ont réalisés avec des impulsions femtosecondes sont plus marqués et présentent moins de bavures. Sur les figures (5.1) et (5.2), nous avons reproduit leurs résultats pour illustrer ces caractéristiques particulières d'ablation.

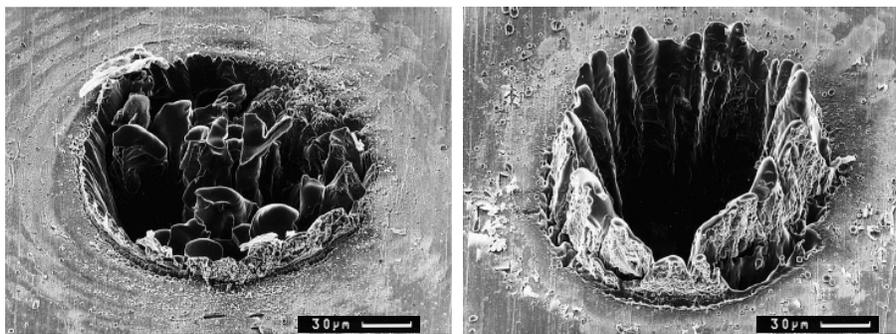


FIG. 5.1 – Photographies de microscopie électronique à balayage de trous obtenus sur une cible d'acier par une impulsion laser à 780 nm de 80 ps, 900 μJ , $F=3.7 \text{ J/cm}^2$ (à gauche) et de 3.3 ns, 1 mJ, $F=4.2 \text{ J/cm}^2$ (à droite) [27].

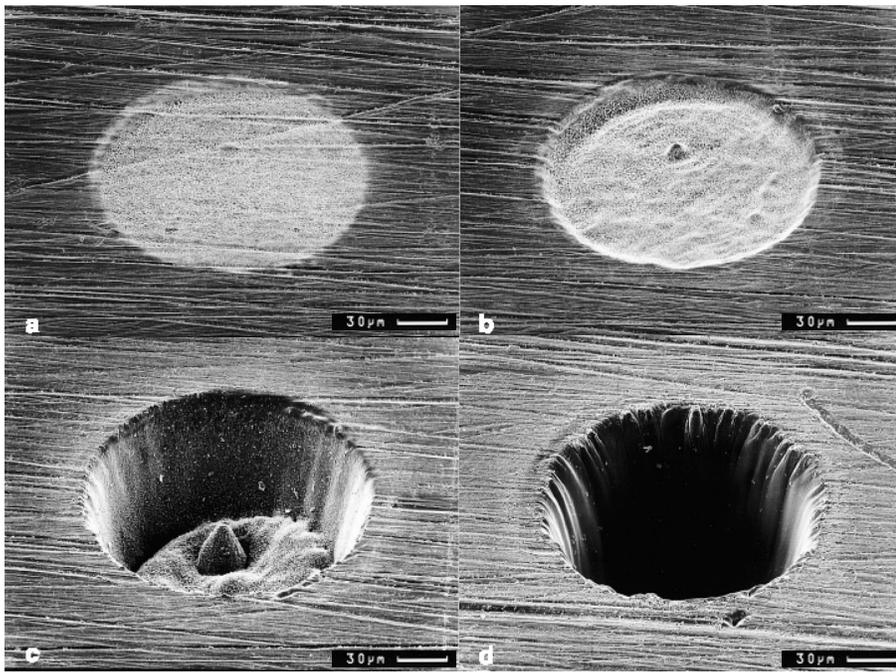


FIG. 5.2 – Photographies de microscopie électronique à balayage de trous obtenus sur une cible de cuivre par un laser de 250 fs, d'une énergie de 0.5 mJ, $F=2.5 \text{ J/cm}^2$ à une longueur d'onde $\lambda = 390 \text{ nm}$, pour 10 (a), 100 (b), 1000 (c) et 30000 (d) impulsions [27].

Preuss *et al* furent les premiers à étudier expérimentalement la dépendance en fluence des taux d'ablation dans des métaux comme le nickel, le cuivre, le molybdène, l'indium, le tungsten et l'or [118]. Ils ont mesuré les taux d'ablation pour des impulsions UV au moyen d'un spectromètre de masse. En 1997, Nolte *et al* ont observé deux régimes d'ablation distincts dans le cuivre, à partir desquels ils ont déduit des dépendances logarithmiques du taux d'ablation en fonction de la fluence incidence [111]. Plus récemment, Hashida *et al* ont également étudié la dépendance du taux d'ablation en fonction de la fluence pour différents métaux par mesures de profondeurs de cratères réalisés grâce à des impulsions de 70 fs [60]. De nombreux paramètres influencent ainsi le comportement de l'éjection de la matière en surface des métaux. Wynne et Stuart se sont intéressés aux effets de la profondeur du trou, de la durée d'impulsion et de la pression ambiante sur la profondeur d'ablation dans l'aluminium et l'acier inoxydable [159]. Il ressort de leur étude que, contrairement à d'autres résultats publiés [94], la durée d'impulsion ne joue pas pour des impulsions comprises entre 150 fs et 500 ps. Par contre, la rugosité de surface s'est avérée être une caractéristique déterminante pour la profondeur du trou.

Diverses études expérimentales ont ainsi été dédiées à la caractérisation des effets modifiant la quantité de matière éjectée par les impulsions ultracourtes dans l'objectif d'optimiser le micro-usinage. Dans l'étude que nous allons présenter dans la suite, nous nous sommes particulièrement intéressés à la dépendance en fluence du taux de matière ablatée par impulsion.

5.2 Méthodes et résultats expérimentaux

A présent, nous allons donner une description des moyens mis en œuvre pour réaliser des expériences d'ablation et pour déterminer la quantité de matière ablatée à chaque tir laser. Cette série de mesures a été réalisée au LTSI de Saint-Etienne au sein de la plateforme Femto.

5.2.1 Procédés expérimentaux

Les impulsions laser ultracourtes sont générées au moyen d'une chaîne laser Ti : saphir. Des impulsions de basse énergie sont extraites d'un oscillateur à mode bloqué et sont ensuite injectées dans l'amplificateur à dérive de fréquence (système « concerto » de Thales Laser) qui inclue un étireur d'impulsion, un amplificateur régénératif, un amplificateur à deux passages et un compresseur d'impulsion. Des impulsions d'une longueur d'onde de 800 nm, une énergie de 1.5 mJ, un taux de répétition de 1 kHz et d'une durée typique de 170 fs (FWHM) sont obtenues. Des objectifs de focalisation de longueurs focales égales à 10 ou 25 mm sont utilisés pour permettre de graver des rainures de moins de 30 μm de largeur. Le montage expérimental complet est représenté sur la figure (5.3).

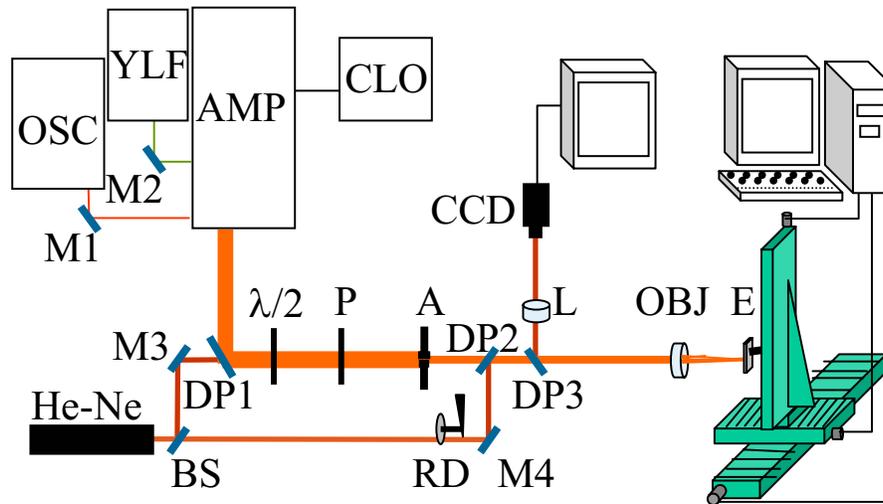


FIG. 5.3 – Montage expérimental [92]. OSC : oscillateur Ti : saphir, 80 MHz, 800 nm, 1.6 nJ/impulsion, 120 fs; YLF : laser Nd : YLF, 532 nm, 20 W, 1 kHz, 400 ns; AMP : amplificateur à dérive de fréquence, 1 kHz, 800 nm, 1.5 mJ par impulsion, 150 fs; He-Ne : laser Hélium-Néon continu d'alignement et d'imagerie; CLO : synchronisation et compteur d'impulsions; Mi : miroirs; BS : lame séparatrice; A : ouverture circulaire; DPi : lame dichroïque; P : polariseur; $\lambda/2$: lame demi-onde; L : lentille; OBJ : objectif de focalisation; RD : diffuseur tournant; E : échantillon.

Le procédé d'ablation est contrôlé en temps réel grâce à un système d'imagerie incohérente qui consiste à illuminer une lame diffusante en rotation avec un laser He-Ne. Les effets de

« speckle » observés avec la caméra CCD sont alors lissés. L'irradiation laser est réalisée au point image d'une ouverture localisée avant l'objectif ce qui permet de réduire les effets de conicité des cratères dus à un faisceau spatialement inhomogène au point focal. En déplaçant l'échantillon devant le faisceau laser fixe, des fentes ou rainures sont alors créées, plus ou moins profondes suivant le nombre de passages. Sur la figure (5.4), nous avons juxtaposé une photographie MEB (Microscope Electronique à Balayage) de fentes également espacées à une image profilométrique obtenue avec un profilomètre optique.

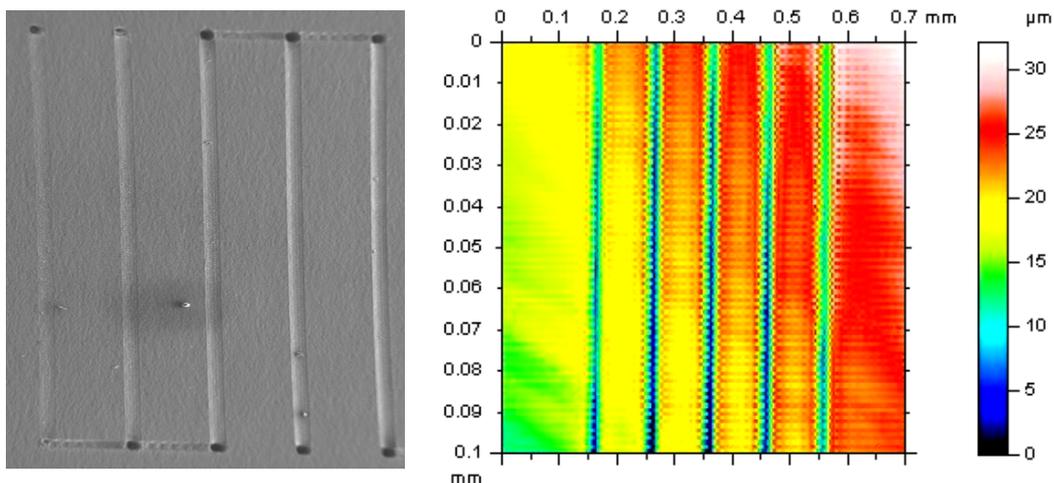


FIG. 5.4 – Image MEB de fentes obtenues pour différents nombres de passages devant le faisceau (à gauche). Image donnée par le profilométrique optique d'un réseau de fentes (à droite).

La profondeur de chacune des fentes est mesurée au moyen d'un profilomètre optique d'une résolution de 10 nm environ en profondeur. Il est important qu'il y ait eu suffisamment d'impulsions en chaque point de la rainure pour s'assurer de pouvoir réaliser une moyenne de la quantité de matière ablatée par tir. Plusieurs observations ont en effet montré que la quantité de matière ablatée était différente lors des premières impulsions, sans doute en raison des effets de surface [92]. Ensuite, pour quelques dizaines d'impulsions jusqu'à quelques centaines, le taux d'ablation par impulsion reste constant. Il s'agit de notre domaine d'étude afin de nous limiter au cas où la profondeur ablatée est linéaire en fonction du nombre de tirs. De plus, cette dernière a tendance à saturer pour un nombre d'impulsions trop important en raison de la formation de plus en plus prononcée du cratère dans lequel doit se propager chaque impulsion. Nous avons donc imposé un recouvrement local d'une dizaine d'impulsions par passage devant le faisceau laser pour satisfaire la condition de reproductibilité impliquant que chaque impulsion rencontre un état de surface presque identique et produise alors des dommages similaires. Nous allons maintenant préciser de quelle manière nous avons mesuré un taux d'ablation par impulsion dans la cible.

5.2.2 Obtention d'un taux d'ablation

Plusieurs séries de rainures sont réalisées pour différents nombres de passages à une fluence donnée. Ces rainures sont usinées au plan image d'une lentille de focale 10 mm. Le diamètre théorique du faisceau laser est alors estimé à $16 \mu\text{m}$, il doit correspondre à la largeur maximale des rainures si la diffusion thermique, les aberrations et l'incertitude sur le déplacement des platines sont négligées. Le taux d'ablation par tir doit être effectué sur la surface de la tache focale pour être cohérent avec la fluence utilisée. Or, si en théorie la tache laser est homogène, similaire à un « top-hat » au plan image, en pratique ce n'est pas tout à fait le cas et l'intensité du faisceau se révèle être moins forte sur les bords qu'au centre. Il peut alors advenir que pour les plus faibles énergies laser, seule une portion de la tache laser conduise à de l'ablation. Dans ce cas, il convient de faire attention à la notion conjointe de fluence et de taux d'ablation. En effet, le diamètre de la tache focale, définissant la valeur de la fluence, n'a aucune raison d'être déterminé par le diamètre du volume endommagé, comme il est coutume de le faire [49, 81, 111].

Pour mesurer avec plus de précision la tache focale, des trous sont également réalisés à côté de chacune des séries. Ils ont été effectués par huit impulsions et leur dimension doit permettre d'identifier au mieux le diamètre du volume ablaté par une impulsion. Nous mesurons au profilomètre optique la profondeur moyenne ablatée sur la rainure mais il faut également moyenner sur la surface n'ayant pas été ablatée pour rester cohérent avec notre définition de la fluence. Ainsi, si nous notons ϕ_t le diamètre du trou et ϕ_s le diamètre du spot au plan image, estimé grâce à la relation de conjugaison d'optique géométrique [19], le taux d'ablation moyen \mathcal{T}_{moy} s'écrit en fonction du taux d'ablation mesuré \mathcal{T}_{mes} :

$$\mathcal{T}_{moy} = \mathcal{T}_{mes} \times \frac{\phi_t}{\phi_s} \quad (5.1)$$

Le taux d'ablation mesuré par tir s'exprime comme le rapport de la profondeur ablatée totale sur le nombre d'impulsions effectives et s'écrit en fonction de la profondeur ablatée mesurée D_{mes} , de la distance d entre deux impulsions et du nombre de passages N_P :

$$\mathcal{T}_{mes/tir} = \frac{D_{mes} \times d}{N_P \times \phi_t} \quad (5.2)$$

Nous pouvons alors écrire le taux d'ablation par impulsion indépendamment du diamètre effectif de dommage :

$$\mathcal{T}_{moy/tir} = \frac{D_{mes} \times d}{N_P \times \phi_s} \quad (5.3)$$

Nous avons alors pu faire correspondre à ce taux d'ablation par tir une fluence de $F_s = \frac{4E_{tot}}{\pi\phi_s^2}$ qui est de ce fait équivalente aux fluences que nous imposerons dans nos simulations 1D, puisqu'elles ne sont pas corrélées à la taille du cratère obtenu expérimentalement.

La profondeur totale ablatée D_{mes} est mesurée grâce au profilomètre optique. La figure (5.5) montre une reconstitution 3D au profilomètre optique de rainures usinées dans une feuille d'aluminium pour différents nombres de passages. De gauche à droite, des séries de 2 à 10 passages ont été réalisées. Trois mesures sont effectuées : en bas, au centre et en haut de chacune des rainures. Un exemple de mesure est donné sur la figure (5.6) pour plusieurs nombres de passages. Nous voyons clairement la difficulté à estimer précisément la hauteur de la surface ainsi que la profondeur maximale de la rainure en raison, par exemple, de la rugosité de surface.

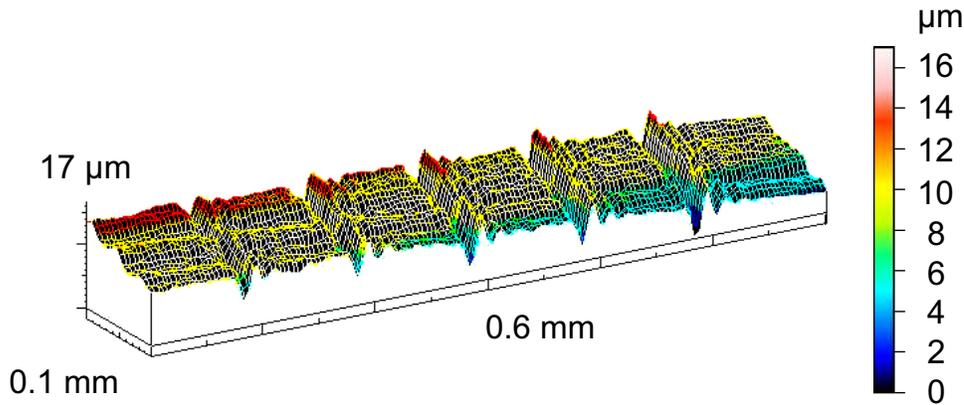


FIG. 5.5 – Reconstitution 3D au profilomètre optique de l’usinage de rainures dans une feuille d’aluminium. Conditions expérimentales : impulsions de 800 nm, 170 fs à 1 kHz, fluence de 2.1 J cm^{-2} , vitesse d’usinage : 2 mm/s.

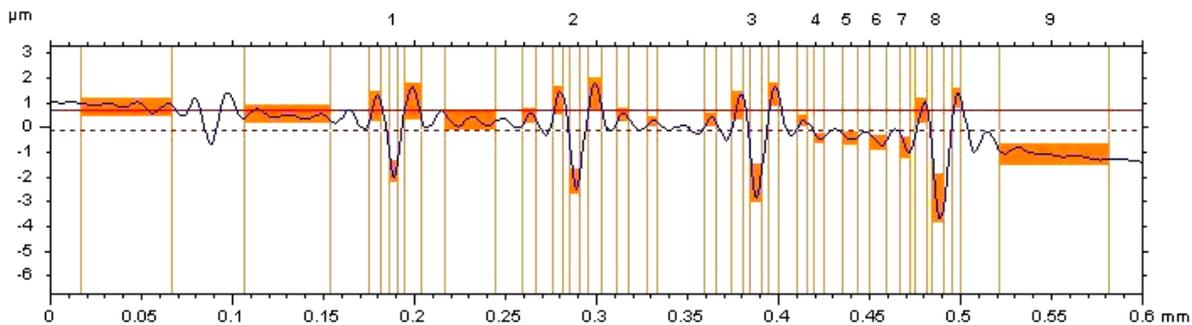


FIG. 5.6 – Mesure profilométrique de la profondeur d’une série de rainures. La profondeur est déterminée comme la différence de hauteur entre la surface non irradiée de l’échantillon et le fond du cratère. La résolution spatiale de la mesure est de l’ordre du micromètre.

Après cet exposé des conditions et des moyens expérimentaux mis en œuvre pour réaliser une série de mesures d’ablation par impulsions laser ultracourtes, nous allons détailler les mécanismes susceptibles de conduire à l’ablation de matière. Ceux-ci nous permettront d’envisager un lien entre les résultats obtenus grâce aux expériences précédentes et nos simulations. Les résultats d’expérience seront présentés par la suite, en confrontation avec nos résultats théoriques.

5.3 Mécanismes et critères de l'éjection de matière

Dans un premier temps, nous allons donner une liste non exhaustive des différents mécanismes potentiellement responsables de l'ablation laser. Ils peuvent être d'origine thermodynamique, mécanique ou encore électrostatique. Par la suite, nous détaillerons les propriétés des métaux lors de la transition solide à plasma et plus spécialement, dans le dernier paragraphe, la transformation liquide-gaz.

5.3.1 Les multiples possibilités d'éjection

Les caractéristiques de l'endommagement résultant des impulsions ultracourtes ont donné lieu à de nombreuses interprétations sur la nature de l'éjection de matière. Tout d'abord, rappelons que le taux de chauffage est extrêmement élevé, de l'ordre de 10^{14} K/s, ce qui représente une opportunité unique pour étudier la dépendance et les limites cinétiques aux transitions de phase. De plus, le matériau peut présenter des structures nucléiques (nucléation), où la taille critique des noyaux devient comparable à quelques distances interatomiques [69]. La physique associée aux transitions de phase est complexe et requiert une connaissance précise des effets de l'énergie thermique sur le franchissement de la barrière coulombienne. Dans un traitement de fluide continu, comme dans le code utilisé, ces effets sont répartis statistiquement sur l'ensemble des particules constituant l'élément de fluide, de manière à représenter la décohésion sous la forme de changement brusque des grandeurs macroscopiques. A l'inverse, les méthodes basées sur la dynamique moléculaire autorisent un traitement microscopique de la relaxation interne de l'énergie. Elles permettent de redéfinir les propriétés thermodynamiques qui sont associées au système au moment de son éjection, et non d'utiliser celles-ci pour prédire l'éjection. Cette démarche a ainsi pour avantage de ne pas dépendre uniquement des données référencées grâce aux expériences antérieures. Chacune de ces deux manières d'appréhender la description du matériau donne toutefois des informations intéressantes pour sélectionner le principal mécanisme d'éjection à intensité d'énergie fixée. Ainsi, de nombreux auteurs se sont penchés sur les raisons microscopiques de l'éjection de la matière en surface à partir de modèles fluides [5, 21, 22, 25, 66, 67, 87, 153, 154], ou de dynamique moléculaire [6, 97, 114], ou encore via une utilisation conjointe des deux [68, 69, 128]. Nous allons à présent donner une définition de chacun des processus proposés avant d'en discuter leur pertinence dans le type d'interaction que nous étudions.

Tout d'abord, le mécanisme le plus souvent envisagé est la *vaporisation*, qui inclue à la fois la *sublimation* et l'*évaporation*. Elle concerne l'émission d'atomes ou de molécules à la surface d'un solide ou d'un liquide à n'importe quelle température. L'*ébullition* est le terme consacré au cas de la formation de bulles s'échappant de la surface après diffusion dans le milieu, à la manière de bulles dans une coupe de champagne. Il s'agit alors d'un processus de *nucléation hétérogène* et s'effectue, au contraire de l'évaporation, à une température supérieure à la température d'ébullition T_b . Lorsqu'un liquide s'approche de la température critique T_C , la nu-

cléation est qualifiée d'*homogène* et le milieu se concentre en gouttelettes sphériques dont le rayon, supérieur à un rayon critique, croît jusqu'à saturation. Nous parlerons d'*explosion de phase* ou encore d'*ébullition explosive* au sens de Martynyuk [98] et Fucke et Seydel [47]. Le processus plus complexe de *décomposition spinodale* suppose que le système, porté au voisinage inférieur du point critique, subit de fortes instabilités thermodynamiques. En conséquence, des structures inhomogènes se développent et une séparation de phase soudaine apparaît, une partie seulement du matériau est éjectée alors que le reste se refroidit [153]. Le mécanisme de *fragmentation* pouvant survenir en phase solide ou liquide a été particulièrement étudié par Grady [53]. Ce mécanisme d'ablation est directement lié aux contraintes en tension subies par le matériau. Dans le cas d'un solide, à la suite de déformations internes trop élevées, de petites cavités se forment (processus dit de *cavitation*) et grandissent pour former un trou de taille macroscopique. Une fracture ou écaille apparaît alors et nous parlerons de phénomène de *fracturation* ou d'*écaillage*. Dans le cas d'un liquide, l'énergie de surface, liée à la tension de surface, est la principale propriété permettant de garder la cohésion s'opposant à la *fragmentation*. Celle-ci est équivalente à la formation et à la croissance de vide, nous pouvons également parler de *nucléation de vide*. Il s'agit dans ce cas précis d'un processus d'origine mécanique qui se distingue de l'ébullition explosive par l'absence d'atome dans le vide. Enfin, nous pouvons expliquer le principe de l'*explosion coulombienne* dans la gamme de flux intermédiaire¹, qui est cette fois un mécanisme d'origine électrostatique, par la *séparation de charge* créant un champ électrique entre les électrons et les ions. L'arrachement des ions est induit par les électrons trop énergétiques s'échappant de la surface du solide. Nous allons discuter dans la suite de la prépondérance relative des phénomènes que nous venons de décrire.

Kelly et Miotello ont montré que l'ébullition nécessitait un temps de diffusion des bulles en profondeur vers la surface, ce qui est un obstacle cinétique trop important même pour des impulsions laser de l'ordre de la dizaine de nanosecondes [76]. Le processus d'explosion de phase serait en fait, selon ces deux auteurs, le seul processus d'ablation cinétiquement possible pour les impulsions ultracourtes.

Lorazo *et al* ont tenté d'identifier les processus responsables de l'ablation de cibles métalliques grâce à des simulations de dynamique moléculaire associées à une approche Monte Carlo [97]. Celles-ci ont fait apparaître différents types d'ablation dépendant de l'énergie incidente. Ainsi, trois situations distinctes ont été observées : la nucléation homogène, la fragmentation photomécanique et la vaporisation. De la même manière les simulations combinées de dynamique moléculaire et du modèle à deux températures ont permis à Ivanov *et al* d'assimiler le mécanisme d'ablation à un processus photomécanique de désintégration dû aux fortes contraintes en traction présentes à l'intérieur de films métalliques [69].

Le mécanisme de décomposition spinodale ne semble pas avoir été observé par les groupes utilisant des codes de dynamique moléculaire. En revanche, Vidal *et al* l'ont identifié comme

¹L'explosion coulombienne est due, dans une gamme d'énergie plus élevée, à la force pondéromotrice qui repousse les électrons dans la cible, transférant ainsi un moment cinétique aux ions. Le rapport des forces électrostatique et pondéromotrice a été calculé par E. Gamaly *et al*[50].

étant le processus responsable de l'ablation dans leurs simulations hydrodynamiques [153]. C'est en effet lors du refroidissement du matériau en profondeur, passant à proximité du point critique et rentrant dans une zone d'instabilité (*cf* § 5.3.2 suivant), que l'éjection de la matière externe à cette zone était supposée se produire. Néanmoins, leurs simulations sont effectuées sur la base du code MEDUSA, incluant les EOS de More *et al* (QEOS [104]) comme nous l'avons spécifié dans le *chapitre 3*. Lors des transitions liquide-gaz, ces EOS suivent un comportement de type van der Waals qui introduit un changement de signe de la quantité $(\partial P/\partial \rho)_T$ dans la zone instable, provoquant la décomposition spinodale observée. Ils ont plus récemment étendu leur étude en décrivant ce phénomène bien au-dessous du point critique, correspondant alors à un processus de fracturation (nous verrons ce point particulier plus loin, au § 5.3.4). L'existence de zones métastables (liquide surchauffé et gaz sursaturé) est directement liée à la cinétique de la transition, qui est prise en compte dans les modèles de dynamique moléculaire mais pas dans les modèles fluides. En conséquence, ce mécanisme de décomposition spinodale est intimement lié au comportement des EOS utilisés et son apparition ne peut pas être validée avec certitude par les codes hydrodynamiques classiques.

Le processus d'ablation semble principalement être dû à la vaporisation d'une part, et à la nucléation homogène ou à la fragmentation dans le liquide d'autre part. Ces mécanismes ont lieu lors de la transition de phase solide à plasma. Puisque nous sommes limités à une description fluide du système, nous ne nous pouvons pas obtenir d'informations rigoureuses sur la cinétique des processus. Néanmoins, en supposant que les phénomènes ont suffisamment de temps pour se produire, nous allons présenter les propriétés du métal lors de la transition liquide-gaz et au voisinage du point critique.

5.3.2 Description de la transition solide-plasma

Les figures (5.7) schématisent les diagrammes de phase d'un fluide pur, obtenus en traçant des réseaux d'isochores dans un diagramme $(P-T)$ (à gauche) ou d'isobares dans un diagramme $(T-\rho)$ (à droite). La courbe en cloche, située dans la région $T < T_C$ est appelée courbe de coexistence ou binodale. Dans cette région, la densité est bivaluée : la courbe de coexistence passe par deux points d'ordonnées $\rho_l(T)$ et $\rho_g(T)$, qui sont les densités du gaz et du liquide purs respectivement, à la température et à la pression considérées. A l'intérieur de cette ligne, le liquide et sa vapeur coexistent. A l'inverse, il est possible d'éviter le régime de coexistence en élevant simultanément la température et la densité au-dessus de T_C sans croiser la binodale. La prédominance du liquide sur le gaz lors de la transition de phase se mesure grâce à la différence de densité $(\rho_l - \rho_g)$. Cette différence² diminue lorsque la température augmente et s'annule au point critique. Au voisinage du point critique, les deux branches de la ligne de coexistence se rejoignent et sont telles que $(\rho_l - \rho_g) \sim (T_C - T)^\beta$ où β est un exposant qualifié de *critique*, dont

²La différence $(\rho_l - \rho_g)$ s'appelle *paramètre d'ordre* de la transition liquide-gaz. Au sens de L. Landau, ce paramètre d'ordre est une grandeur qui est nulle dans la phase la plus symétrique et est non nulle dans l'autre. Ici, il n'y a pas de changement de symétrie mais il doit s'annuler au-dessus du point critique et il n'y a alors plus aucune distinction entre la phase liquide et la phase gazeuse.

la valeur, déterminée expérimentalement vaut environ 0.32 pour la plupart des fluides. Lorsque la température augmente tout en restant inférieure à T_C , les fluctuations s'accroissent au fur et à mesure que l'on se rapproche du point critique, pouvant induire une modification importante des propriétés optiques. Au contraire, pour $T > T_C$, l'augmentation de densité à température constante ne révèle pas de transition de phase. Pour de telles températures, un seul état de matière est possible et la matière passe de manière continue du solide ou liquide au gaz.

La zone métastable est délimitée par la spinodale où l'élasticité du matériau devient nulle et la phase métastable devient instable. A l'intérieur du domaine thermodynamique délimité par cette spinodale, la matière n'est plus dans une phase homogène.

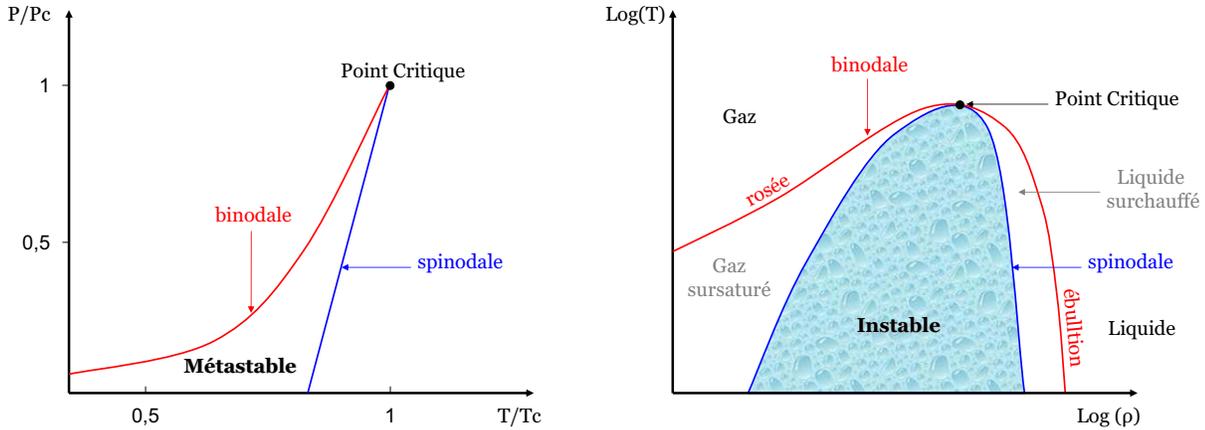


FIG. 5.7 – Diagramme des phases dans le plan $(P-T)$ [à gauche] et dans le plan $(T-\rho)$ [à droite]. La ligne de coexistence (binodale) et la limite d'instabilité du mélange (spinodale), se rejoignant au point critique, sont tracées sur les deux figures.

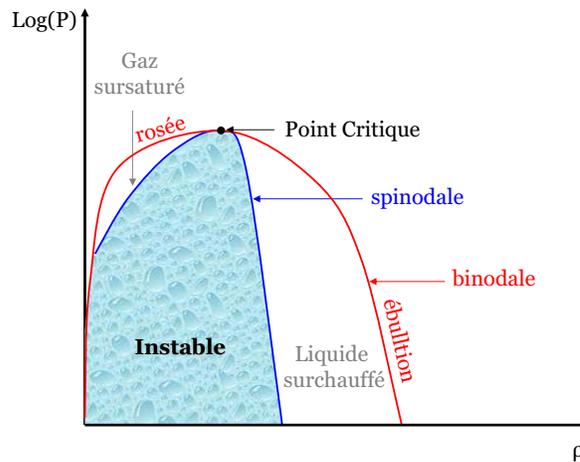


FIG. 5.8 – Diagramme des phases dans le plan $(P-\rho)$. Nous distinguons ici la zone métastable (gaz sursaturé et liquide surchauffé) comprise entre la ligne binodale et la spinodale et la zone instable délimitée par cette spinodale. La ligne de coexistence (binodale) et la ligne limite d'instabilité du mélange (spinodale) sont également représentées.

5.3.3 Phénoménologie de la transition liquide-gaz proche du point critique

L'énergie absorbée au cours de l'irradiation est distribuée sur les électrons contenus dans l'épaisseur de peau. Nous avons vu au *chapitre 2* comment elle se propageait par la suite plus profondément dans le milieu tout en étant progressivement transférée aux ions. La température électronique est largement supérieure à celle des ions pendant ce processus de chauffage mais la relaxation complète de l'énergie intervient typiquement dans les premiers instants de la mise en vitesse du matériau. Ainsi, il est légitime de considérer que le découplage en température n'a plus d'influence après ce chauffage que nous pouvons pratiquement qualifier d'isochore. La matière décrite dans ce paragraphe doit donc être vue comme un système à une seule température. Les figures (5.9) et (5.10) reproduisent les chemins thermodynamiques de l'aluminium et du cuivre suivis par quelques mailles lors d'une simulation réalisée pour une impulsion de 5 J cm^{-2} , $\lambda = 800 \text{ nm}$, $\tau_L = 150 \text{ fs}$. Les parcours suivis par ces couches infinitésimales, prises à différentes profondeurs dans le solide initial, sont représentés dans un diagramme de phase (P - ρ). Ils vont nous permettre d'analyser le comportement dynamique du matériau lors des transitions de phase et ainsi de déterminer les frontières entre les différents états du matériau afin d'interpréter les expériences d'ablation.

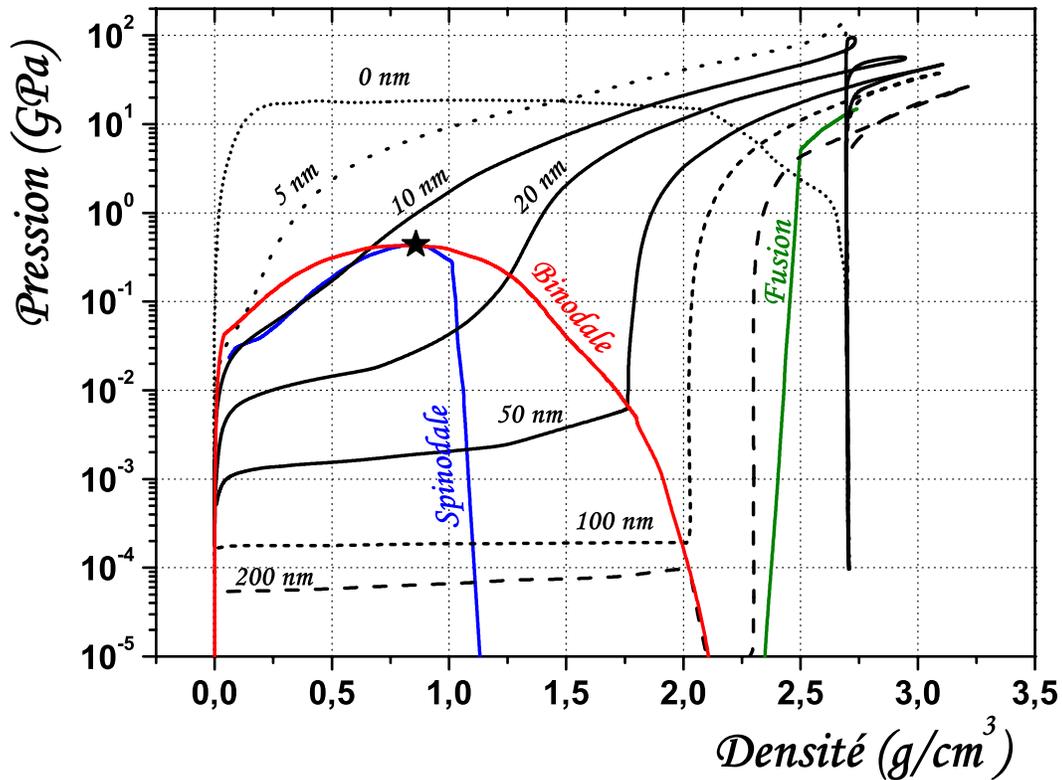


FIG. 5.9 – Chemins thermodynamiques suivis par différentes mailles dans l'aluminium pour différentes profondeurs dans un diagramme (P - ρ). Les courbes binodale, spinodale, fusion ainsi que le point critique (★) sont représentés sur le diagramme.

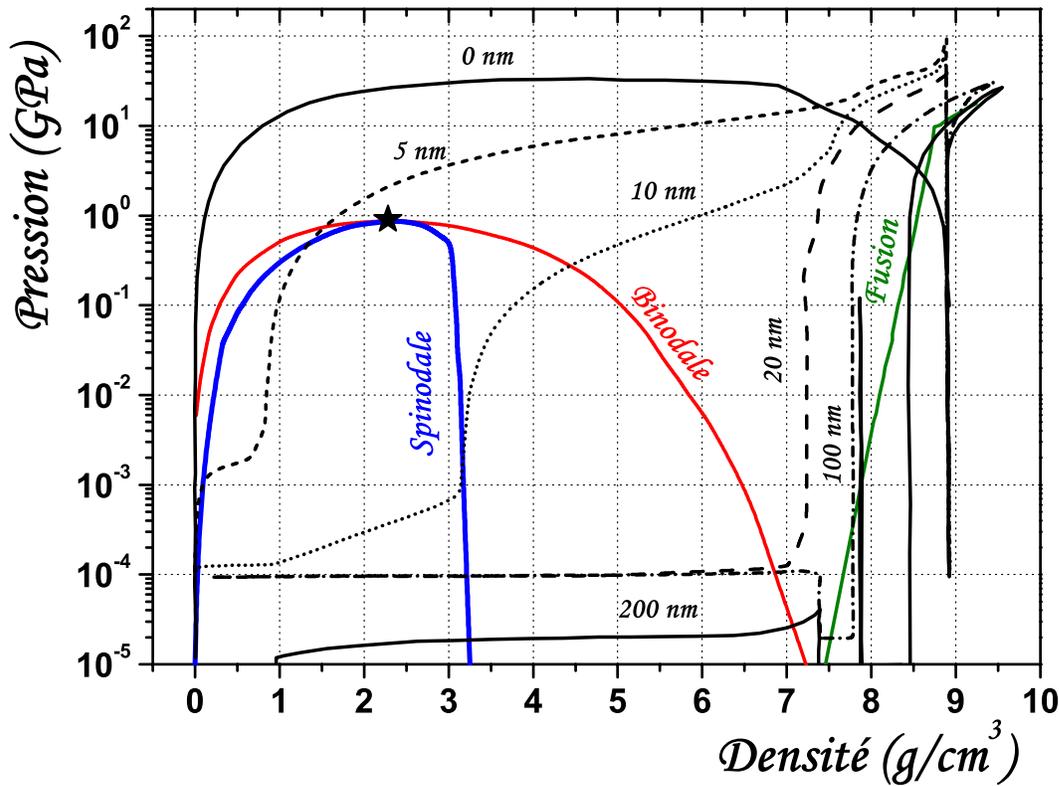


FIG. 5.10 – Chemins thermodynamiques suivis par différentes mailles dans le cuivre pour différentes profondeurs dans un diagramme $(P-\rho)$. Les courbes binodale, spinodale, de fusion ainsi que le point critique (★) sont représentés sur le diagramme.

Aussitôt après l'impulsion, le matériau peut être vu comme un solide chaud à haute pression. La montée en pression du matériau se caractérise par une transition verticale dans le diagramme $(P-\rho)$ puisque sa densité reste identique à sa densité froide ρ_0 . Le niveau de pression atteint est totalement défini par l'équation d'état utilisée. Le relâchement de la contrainte induit une diminution progressive de la densité lors de la mise en détente du matériau. La pression diminue durant cette phase d'expansion mécanique et le métal se refroidit presque adiabatiquement puisque l'énergie n'a pas le temps d'être transférée vers l'extérieur. Si la température initiale excède la température critique, le matériau liquide se comporte comme un gaz en dépit de sa forte densité, typique de la phase liquide. Il ne se produit alors aucun changement de phase. L'expansion se poursuit jusqu'à atteindre la ligne binodale à partir de laquelle il entre dans un régime à deux phases. En traversant la ligne binodale comme un liquide homogène, il se présente sous la forme d'un liquide surchauffé qui tend à se transformer en bulles de gaz à un taux augmentant avec le degré de surchauffage du fluide. Comme nous pouvons le remarquer sur les deux figures, la pression chute nettement à densité constante au voisinage de la densité correspondant à l'abscisse d'intersection du chemin thermodynamique que nous assimilerons à l'isentrope et de la binodale. La vitesse du son, définie par $c_s = (\partial P / \partial \rho)_S^{1/2}$, montre ici un

premier point de discontinuité et s'abaisse alors considérablement. Il s'agit de la principale caractéristique observable avant le franchissement de la binodale. La traversée de la zone de mélange liquide-gaz s'effectue à pression presque constante, alors que la densité diminue progressivement, de manière très lente puisque la vitesse d'expansion est limitée par la vitesse du son lors de la transition de phase (typiquement quelques centaines de mètres par seconde). Une seconde chute de pression apparaît ensuite lorsque la cellule sort de la zone biphasique et se comporte comme un gaz. Une seconde discontinuité dans la vitesse du son est associée à cette transition mélange-gaz [166] et c_s augmente fortement.

Pour des profondeurs supérieures à 200 nm (non représentées sur les figures), une fine couche du matériau peut dépasser la courbe de fusion, en vert sur les figures, tout en conservant une densité supérieure à celle de la zone métastable lors de la diminution de la pression. Il s'agit d'une couche de liquide à densité constante de quelques dizaines de nm, délimitée par le substrat solide et le mélange liquide-gaz, se déplaçant à vitesse constante. Les frontières très marquées entre cette couche et le reste du matériau tendent à faire penser qu'elles pourraient expliquer les figures d'interférences observées par von der Linde et Sokolowski-Tinten lors de l'interaction d'un laser sonde avec un film en expansion [137, 138]. En effet, comme le montre la figure (5.11) obtenue à partir d'expériences de microscopie optique résolues en temps, un système d'anneaux de Newton apparaît pendant une centaine de nanosecondes lors de la vaporisation de la surface d'un échantillon solide après une impulsion laser ultracourte dont la fluence avoisine la fluence seuil d'ablation. Deux surfaces réfléchissantes distinctes sont nécessaires pour qu'un tel phénomène se produise. Il a donc été supposé qu'une couche de liquide, dont les bords marquent les sauts de densité, devait être responsable de cette double réflexion [5, 63].

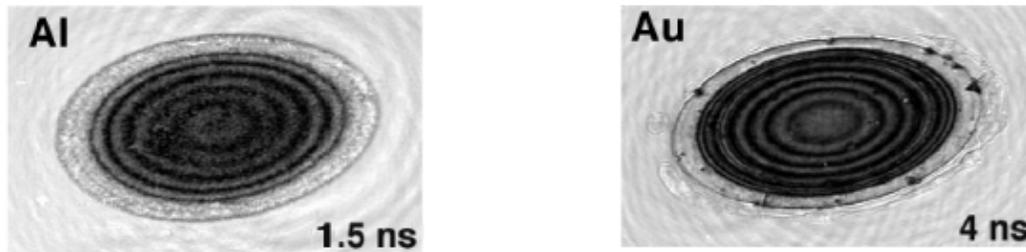


FIG. 5.11 – Exemples d'anneaux de Newton observés par Sokolowski-Tinten *et al* dans un échantillon d'aluminium (à gauche) et d'or (à droite) [138]. Le temps séparant l'irradiation de la mesure est inscrit en bas à droite de chaque figure.

Comme nous l'avons expliqué au *chapitre 4*, la création d'une onde de raréfaction est imputable à la perte de convexité de l'isentrope dans le diagramme ($P-V$) lorsque celui-ci sort de la zone de coexistence. Elle se propage alors vers l'intérieur du matériau et va se réfléchir à la frontière avec le solide froid. L'onde de détente incidente et l'onde transmise vont interférer à l'intérieur de la zone de coexistence, ce qui provoque l'expansion de chacune des cellules lors de

leur transition de phase [63, 64, 5]. Il s'ensuit une évaporation progressive due au mécanisme de nucléation homogène, et le milieu passe continûment d'un liquide contenant des bulles de gaz à une vapeur composée de quelques gouttelettes. Le milieu à deux phases subit alors constamment une déformation qui diminue avec la mise en vitesse progressive de la cellule vers la surface libre. Le taux de déformation \mathcal{T} est une grandeur permettant de définir cette vitesse relative du fluide vis à vis de l'élément qui le précède, il est défini par le rapport entre le différentiel de vitesse et l'épaisseur de la cellule [53] :

$$\mathcal{T} = \frac{u_E - u_I}{z_E - z_I} \quad (5.4)$$

où u_E et u_I sont respectivement les vitesses extérieures et intérieures de chacune des cellules comme nous les avons représentées sur la figure (4.2). Nous pouvons d'ores et déjà faire le lien entre ce taux de déformation et les diagrammes (P - ρ) obtenus dans nos simulations. Il est en effet apparu que \mathcal{T} était de l'ordre de 10^9 s^{-1} dans nos simulations et qu'il était positif, sans osciller autour de zéro durant cette phase d'expansion du liquide. Au contraire, la couche liquide plus en profondeur et de plus forte densité, par exemple à 300 nm de profondeur dans les simulations correspondant aux figures ici présentées, subit un taux de déformation très fluctuant autour de zéro, ne semblant pas privilégier de direction d'expansion. Cette remarque est primordiale pour pouvoir définir correctement notre critère d'ablation comme nous le verrons dans la prochaine section.

Si le chauffage isochore initial est suffisamment intense, le matériau est soumis à une expansion adiabatique sans entrer dans le liquide à deux phases, comme nous pouvons l'observer sur les figures (5.9) et (5.10) pour les mailles les plus proches de la surface. Il suit le parcours d'isothermes au dessus de T_C et se comporte donc comme un gaz idéal. Derrière le front de choc, la densité diminue et la trajectoire du chemin thermodynamique suit une loi de type gaz parfait proche de l'adiabatique de Sackur-Tetrode avec $P \propto \rho^{5/3}$. Dans ce cas de figure, une onde de raréfaction est également créée comme nous l'avons précisé au cours du *chapitre 4*. Comme l'ont fait néanmoins remarquer Bulgakova *et al* [20], la vitesse du son a tendance à augmenter derrière l'onde de raréfaction alors qu'elle diminuait considérablement durant le passage de l'état liquide à l'état gazeux. Il en résulte que dans l'hypothèse où la majorité des cellules serait portée au-dessus du point critique, l'onde de raréfaction prendrait un profil différent et favoriserait ainsi une éjection du matériau en surface exempt de gouttelettes.

5.3.4 Fragmentation et écaillage

Le processus d'écaillage est une conséquence brutale d'une mise en traction interne dans le solide. Il résulte du recouvrement des ondes de choc à la suite de multiples allers-retours après réflexion aux interfaces. Les interférences constructives peuvent donner lieu à une forte traction localisée, induisant une contrainte pouvant dépasser le seuil de fracture du matériau. Sur la figure (5.12), nous avons schématisé le phénomène de forte traction ponctuelle engendrant l'écaillage. Nous devons souligner qu'il peut se produire en face avant, dans le cas d'un fort gradient de température à la surface du matériau, ou en face arrière, lors de la réflexion de l'onde de choc à l'interface métal-air.

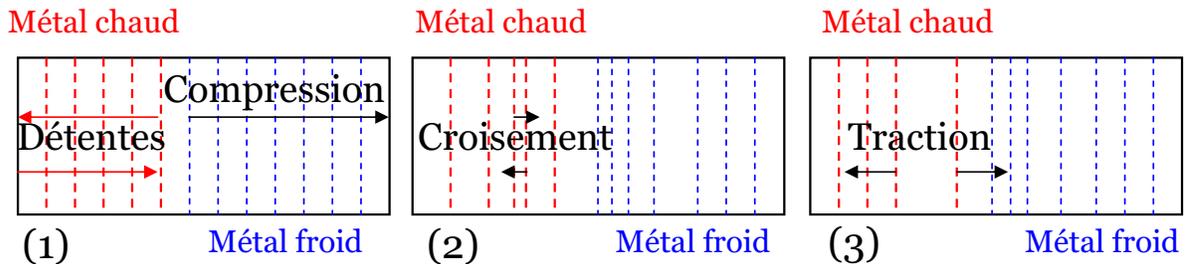


FIG. 5.12 – Schématisation de l'évolution des contraintes conduisant au mécanisme d'écaillage. (1) Chauffage de la cible. (2) Croisement des ondes de détente. (3) Ecaillage en face avant.

Le phénomène d'écaillage à l'arrière d'un échantillon d'aluminium de $25 \mu\text{m}$ a été étudié expérimentalement par Tamura *et al* au moyen d'impulsions laser de 50 fs d'environ 25 J cm^{-2} [148]. Le groupe de Vidal *et al* s'est récemment intéressé à ce type d'endommagement en se plaçant dans les conditions de l'expérience précédente [154]. Ils ont assimilé le processus de fracturation à une décomposition spinodale se produisant cette fois loin du point critique. Lorsque l'évolution de la contrainte en traction oblige la pression à rentrer dans la zone instable délimitée par la courbe spinodale, ce groupe envisage une fracture dans le matériau. Il s'agit d'un mécanisme d'écaillage de la face arrière du cristal qui dépend de l'épaisseur de la cible puisque l'onde de détente doit effectuer un aller-retour dans le matériau. Ils ont déterminé que, dans leur simulation, une tension critique de -12.8 Gpa avait alors été nécessaire pour observer la formation d'une écaille dans le solide, obtenue grâce à une impulsion de 410 J cm^{-2} . Cette fluence s'éloigne nettement des conditions de l'expérience et la détermination théorique de la tension de rupture sur la base du modèle de More *et al* ([104]) ne tient pas compte de l'existence de défauts naturels dans la cible, ce qui limite la pertinence de la valeur de fluence « critique » obtenue.

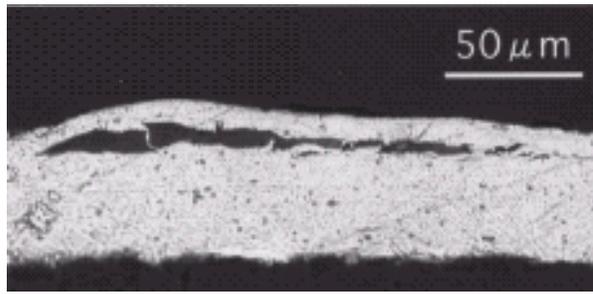


FIG. 5.13 – Microscopie optique d’une coupe d’un échantillon d’aluminium de 50 μm d’épaisseur lors d’un processus d’écaillage face arrière [148].

Les principales caractéristiques d’un choc conduisant à un tel endommagement résident dans l’amplitude et la durée de la traction appliquée. Le caractère dynamique de la traction joue un rôle fondamental dans le phénomène d’endommagement, et les seuils de fracture statique diffèrent des seuils de fracture dynamique. Il semblerait que plus le temps d’application de la traction est élevé, plus le seuil de rupture en traction est bas [16]. Pour ne pas tenir compte uniquement de l’amplitude atteinte par l’onde de traction, critère dit de *cut-off*, nous avons imposé le critère de *Tuler-Butcher* [152]. Ce dernier intègre les effets dynamiques dans sa formulation, notamment la durée de la traction, en procédant à une intégration de la contrainte lorsqu’elle dépasse un certain seuil. Il s’écrit sous la forme suivante :

$$\int_0^t \left[\frac{\sigma - \sigma_S}{\sigma_S} \right]^\lambda dt \leq K_f \quad (5.5)$$

où σ_S est le seuil en contrainte, λ le coefficient d’évolution, et K_f représente la valeur seuil de l’intégrale, au delà de laquelle il y a rupture. Il permet de modéliser l’endommagement fragile et ductile mais il ne décrit pas la refermeture des cavités lors d’une compression. Les valeurs de ces coefficients sont répertoriées dans le tableau (5.1) ci-dessous :

Paramètre Matériau/Unité	σ_S GPa	λ s.u.	K_F s
Aluminium	1	2.02	3.8×10^{-7}
Cuivre	0.36	2	7.7×10^{-7}

TAB. 5.1 – Valeurs numériques des paramètres mécaniques utilisés dans l’utilisation du critère de Tuler-Butcher [125, 152].

Dans nos simulations, le seuil statique de fracturation est dépassé en face avant d’une cible de cuivre, pour des écailles dont les épaisseurs peuvent atteindre 60 nm à 3 J cm^{-2} et 300 nm à 10 J cm^{-2} , à condition de négliger le critère de Tuler-Butcher. Par application de ce dernier, aucune écaille ne se forme aux fluences considérées (0 à 30 J cm^{-2}). Soulignons toutefois que les paramètres de ce critère n’ont pas été déterminés pour les conditions d’irradiations subpico-

secondes. Il convient donc de considérer ce critère avec précaution. Dans le cas de l'aluminium, des contraintes en traction de l'ordre de 0.6 GPa ont été observées. Elles sont inférieures au seuil de fracture fixé à 1 GPa, ce qui ne permet pas d'envisager ce type de dommage. Nous avons également simulé le cas expérimental de Tamura *et al* afin d'identifier une écaille en face arrière. Dans nos simulations, une traction supérieure au seuil de fracturation (1 GPa) apparaît, pouvant former une écaille de 4.5 μm d'épaisseur à l'arrière d'une cible d'aluminium de 25 μm , si nous estimons que le temps d'application de cette contrainte est suffisant. Elle se formerait au bout de 5 ns mais le critère de Tuler-Butcher n'est, cette fois encore, pas respecté puisqu'elle ne s'applique que sur une centaine de picosecondes.

Le processus d'écaillage en face avant pourrait constituer un autre mécanisme d'ablation, à condition que la traction dans le solide ait une durée suffisamment longue pour autoriser la fracturation. Pour cela, il faudrait disposer d'un modèle de fragmentation en phase solide plus adapté aux déformations ultrabrèves, provenant, par exemple, d'une modélisation de dynamique moléculaire ou de résultats expérimentaux. Notons toutefois que nous n'avons pas eu connaissance de l'observation de fragments solides dans la matière éjectée en surface d'échantillons de cuivre, et qu'il est donc probable qu'une contrainte en traction trop brève ne produise pas de fracture. En revanche, nous avons pu reproduire les conditions nécessaires à la formation d'une écaille en face arrière dans le cas d'une cible mince irradiée par une impulsion de forte intensité. Des confrontations entre ce type d'expériences et nos simulations pourraient fournir de nouvelles informations sur les propriétés cinétiques de la fragmentation et ainsi conduire à l'ajustement des modèles existants, dédiés aux déformations de durée plus longue.

5.4 Détermination théorique du taux d'ablation

Connaissant les mécanismes prépondérants d'éjection de matière, nous allons maintenant procéder à l'estimation de la profondeur de matière effectivement ablatée. Elle sera comparée au taux d'ablation moyen expérimental dont l'obtention a été fournie dans le premier paragraphe de ce chapitre. Nous discuterons ensuite de la concordance du modèle et des données expérimentales à partir d'une étude paramétrique des coefficients du modèle à deux températures.

5.4.1 Critère utilisé

Au cours de l'étude que nous avons menée dans la section précédente sur les mécanismes pouvant conduire à l'ablation, nous avons mentionné plusieurs indicateurs permettant de localiser le point de rupture entre la matière dense restant attachée au solide et celle qui semblait vouloir s'en détacher. Tout d'abord, nous supposons que les fortes tractions enregistrées dans les simulations n'occasionnent pas de fracture dans le solide, et nous estimerons que seule la matière dans l'état liquide, gaz ou plasma pourra s'échapper du métal. En l'occurrence, nous nous intéresserons à l'épaisseur de matériau ayant dépassé la température de fusion dépendante de la pression locale. Celle-ci se caractérise par une chute de la densité qui passe rapidement de 2.7 g cm^{-3} à l'état solide dans l'aluminium à environ 2 g cm^{-3} dans l'état liquide. En raison du palier lié au changement de phase solide-liquide, la capacité calorifique subit également une forte variation facilement observable puisque $(\partial E/\partial T)_V$ présente une discontinuité. A l'instant où nous supposons qu'un élément de fluide est ablaté, nous devons nous assurer que sa densité diminue pour ne pas considérer la partie liquide se resolidifiant sur le substrat solide. Ceci suppose que la cellule soit en expansion vers l'avant ce qui nous amène au second critère indispensable d'éjection.

Pour être sûr qu'une cellule numérique va effectivement quitter le matériau, sa vitesse doit être positive, c'est à dire qu'elle se dirige vers la surface libre. Dans le cas contraire, cette cellule serait en compression, et ne pourra s'échapper que plus tard, lors de sa détente, si les autres critères sont respectés. Ainsi, au passage de l'onde de choc, le matériau en profondeur peut être chauffé à de fortes températures puis se refroidir par conduction thermique en attendant de pouvoir être éjecté. Si l'onde de détente le traverse alors que la cellule n'est plus dans l'état liquide, elle sera supposée rester sur le solide. De plus, nous avons imposé à chacune des cellules liquides en expansion vers l'avant de vérifier le critère de taux de déformation que nous avons précédemment défini en (5.4), $\mathcal{T} = (u_E - u_I)/(z_E - z_I) \geq 10^9 \text{ s}^{-1}$. Néanmoins, il est admis qu'un taux de déformation de l'ordre de $\geq 10^7 \text{ s}^{-1}$ est suffisamment important pour produire de la fragmentation [53].

Enfin, dans les résultats de simulations que nous allons présenter dans la suite, chacune des cellules liquides en expansion que nous avons estimée comme ablatée, était en phase de transformations liquide-gaz. C'est ce que nous avons établi dans la section précédente où nous avons montré sur les diagrammes $(P-\rho)$ numérotés (5.9) et (5.10) que durant la transition de

phase, les cellules diminuaient en densité, ce qui correspond à la phase de détente. La zone liquide intermédiaire bloquée entre la transformation de phase et le solide est donc supposée rester sur le substrat. A partir de ce critère appliqué dans chacune des mailles de la simulation, nous avons proposé des quantités de matière ablatée à une fluence donnée pour le cuivre et l'aluminium. Nous les avons comparées aux courbes expérimentales de taux d'ablation, obtenues par la méthode exposée au (§ 5.2.2).

5.4.2 Dépendance en fluence de la profondeur ablatée

Une des difficultés de l'approche Lagrangienne est d'avoir une discrétisation spatiale du matériau qui se déforme au cours du temps. En effet, l'hydrodynamique conduit à la mise en vitesse de la surface et à la variation de volume de chacune des mailles. Nous définirons donc la profondeur ablatée comme étant la profondeur initiale de la dernière maille éjectable. En supposant que les n premières mailles sont ablatées, nous nous référerons à la position en profondeur de la maille n à $t = 0$. En appliquant la somme des critères que nous avons détaillés dans le paragraphe précédent, nous avons fourni une profondeur d'ablation théorique pour une gamme de fluences comprises entre 0 et 35 J cm^{-2} pour des échantillons de cuivre et d'aluminium. Nous avons fixé la durée d'impulsion à 170 fs et la longueur d'onde à 800 nm. Sur la figure (5.14), nous présentons la courbe de quantité de matière ablatée en fonction de la fluence laser incidente dans le cas du cuivre. Elle est comparée à celle donnée par les expériences précédemment décrites.

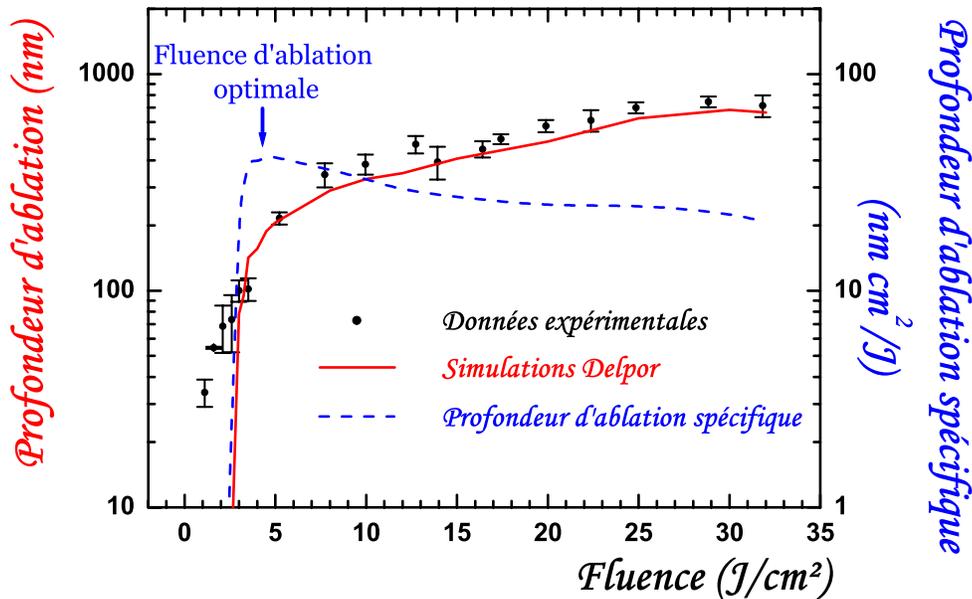


FIG. 5.14 – Dépendance en fluence de la profondeur ablatée par impulsion dans une cible de cuivre. Sur le même graphique sont représentés les résultats des expériences d'ablation effectuées au laboratoire TSI (points), la courbe de simulation d'ablation DELPOR (trait plein) ainsi que la profondeur d'ablation spécifique, caractéristique de l'efficacité (tirets).

Nous observons un bon accord entre les données expérimentales et les taux d'ablation calculés. La dynamique de la courbe est bien reproduite dans l'ensemble puisqu'elle présente un coude autour de 5 J cm^{-2} que les simulations parviennent à restituer. Ceci montre bien que les processus pris en compte dans nos simulations reproduisent fidèlement les conditions de l'expérience. Pour les plus hautes fluences, supérieures à 5 J cm^{-2} , l'accord entre la courbe théorique et les expériences est bon. Par contre, pour des fluences plus faibles nous observons un décalage entre les deux seuils d'ablation que nous détaillerons par la suite.

Ces résultats montrent que le taux de matière ablatée a tendance à saturer pour les fortes fluences. Ce phénomène est principalement dû au fait que la mise en vitesse de la surface du matériau nécessite de l'énergie mécanique qui est, en quelque sorte, puisée dans l'énergie thermique interne. Lorsque la fluence augmente, la température de l'échantillon augmente à sa surface ce qui produit une expansion plus importante. Celle-ci emporte une partie de l'énergie totale qui ne contribue pas au processus d'ablation. De plus, plus la détente du matériau à sa surface libre est importante, plus le gaz « appuie » sur la couche liquide qui ne peut alors plus se détendre et reste confinée sur le métal solide. Le comportement de la courbe d'ablation est donc intimement lié à l'hydrodynamique du matériau.

Une conversion trop importante de l'énergie thermique en énergie cinétique n'est pas utile pour les processus d'ablation. Ainsi, pour les hautes fluences, une partie de l'énergie incidente est perdue dans l'expansion plasma. A l'inverse, pour les faibles fluences, il n'y a pas d'ablation en profondeur si le métal solide n'a pas reçu suffisamment d'énergie pour pouvoir se transformer en liquide. Il est donc naturel d'envisager une fluence optimale qui peut être obtenue en recherchant la fluence pour laquelle le rapport entre le taux d'ablation et l'énergie délivrée par impulsion est maximum [80]. Ceci nous a conduit à définir une profondeur d'ablation spécifique, égale à la profondeur d'ablation théorique divisée par la fluence associée, que nous avons tracée sur la même figure. Nous remarquons que la fluence d'ablation optimale apparaît au niveau du coude de la courbe précédente, à environ 5 J cm^{-2} dans le cuivre. Ce point correspond à un comportement critique de l'hydrodynamique du système pour lequel l'efficacité d'ablation est maximale. Nous préconisons donc que l'utilisation d'impulsions laser à cette fluence permet d'optimiser l'ablation du matériau.

Similairement à la courbe précédente, nous avons représenté sur la figure (5.15) la dépendance en fluence du taux d'ablation et de la profondeur d'ablation spécifique dans le cas d'un échantillon d'aluminium sous les mêmes conditions d'irradiations. Cette fois encore, nous observons un bon accord général entre les données expérimentales et la courbe de simulation DELPOR. Seuls les taux d'ablation à basses fluences sont mal reproduits. Les caractéristiques principales de ces courbes restent identiques au cas précédent. Nous pouvons mentionner le fait que le coude se trouve à environ 200 nm pour les deux matériaux, c'est à dire que l'effet de l'hydrodynamique commence à jouer à la même profondeur. La profondeur d'ablation spécifique calculée par rapport à la courbe théorique montre une fluence optimale beaucoup plus marquée à environ 0.5 J cm^{-2} , qui correspond à notre point d'efficacité maximale estimée.

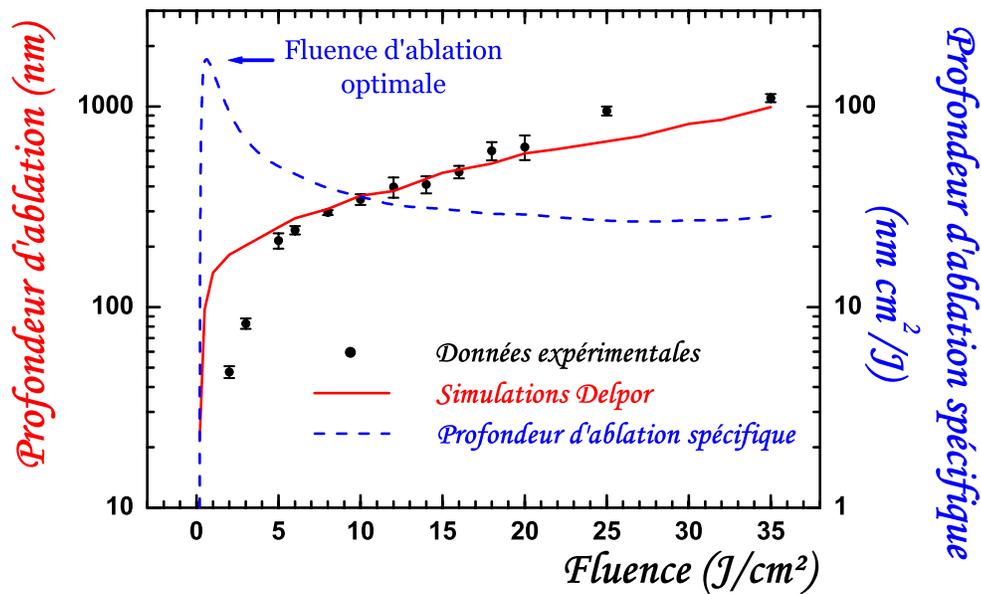


FIG. 5.15 – Dépendance en fluence de la profondeur ablatée par impulsion dans une cible d'aluminium. Sur le même graphique sont représentés les résultats des expériences d'ablation effectuées au laboratoire TSI (points), la courbe de simulation d'ablation DELPOR (trait plein) ainsi que la profondeur d'ablation spécifique, caractéristique de l'efficacité (tirets).

Il faut noter que ces courbes de simulation du taux d'ablation sont fortement dépendantes des valeurs du coefficient de couplage et de la conductivité thermique. Or, le facteur de couplage est assez mal connu et parmi les valeurs relevées dans la littérature, il peut varier jusqu'à un ordre de grandeur [128]. Ceci peut expliquer le décalage observé entre les courbes théoriques et expérimentales. Il peut également être lié à une mauvaise prise en compte de la variation des paramètres optiques durant l'irradiation laser. Ainsi, dans le cas du cuivre, une élévation de la température électronique augmenterait l'absorption en raison de l'augmentation des collisions entre électrons libres. A l'inverse, l'existence d'une transition interbande à 800 nm dans l'aluminium pourrait conduire à diminuer l'absorption d'énergie optique [29, 43, 113]. Nous développerons cette variation de l'absorption optique dans la seconde partie de ce travail. Ce décalage existe peut-être encore pour les plus fortes fluences, mais il est alors contenu dans les incertitudes et « écrasé » par l'échelle logarithmique. Le désaccord observé aux basses fluences nous a conduit à étudier l'influence de ces paramètres sur le seuil en fluence de l'ablation dont nous allons maintenant discuter.

5.4.3 Influence des coefficients du modèle

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe précédent, les simulations ont tendance à sur-estimer la fluence seuil d'ablation F_{Th} dans le cas du cuivre et à la sous-estimer dans le cas de l'aluminium, par rapport à celles obtenues expérimentalement. Il pourrait s'agir d'un effet dû à une mauvaise connaissance des valeurs des paramètres du système. Ainsi, nous avons vérifié qu'en faisant varier la valeur du coefficient de couplage par rapport à sa valeur standard, nous allions modifier la fluence seuil d'ablation. De même une variation de la valeur de la conductivité thermique électronique influence cette fluence seuil. Comme nous l'avons vu dans l'étude de la forme des ondes de choc (§ 4.4), un changement des deux paramètres principaux du modèle à deux températures, γ et K_e , modifie conjointement les propriétés de diffusion de l'énergie. Pour détailler ce point spécifique, sur la figure (5.16), nous présentons une étude paramétrique du seuil d'ablation en fonction des paramètres du modèle à deux températures.

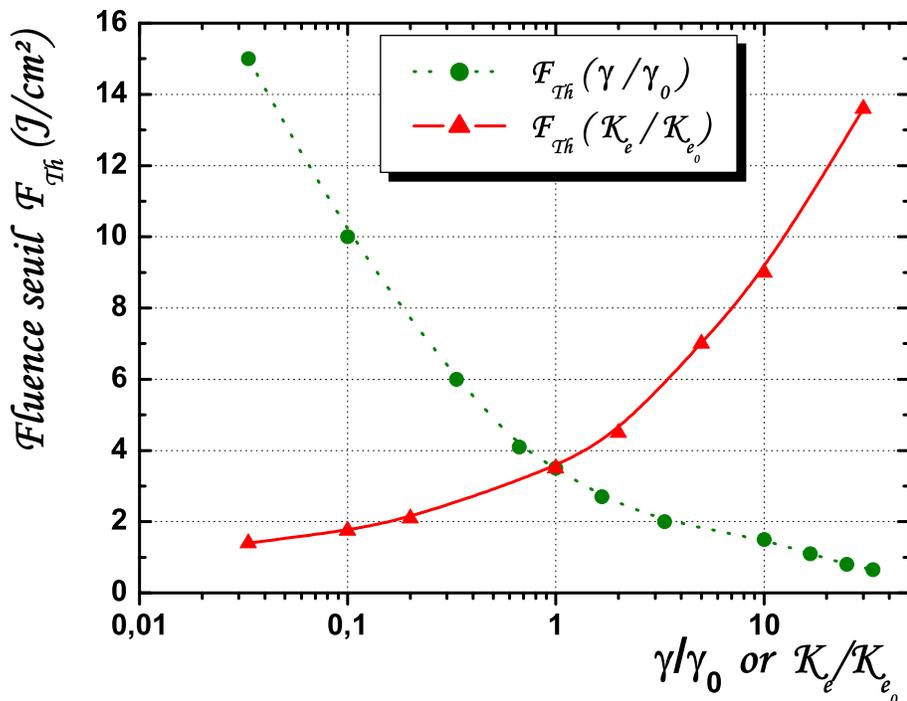


FIG. 5.16 – Dépendance du seuil d'ablation en fonction des paramètres coefficient de couplage, γ et conductivité K_e dans une cible de cuivre. Chacune des simulations a été effectuée en faisant varier un des paramètres par rapport à sa valeur standard (γ_0, K_e^0) et en laissant l'autre paramètre constant.

En faisant varier sur trois ordres de grandeur les valeurs de γ et K_e , nous pouvons voir que celles-ci jouent de manière opposée. En effet, les deux courbes présentées sont presque symétriques par rapport au point d'intersection, correspondant aux conditions standard. Ainsi, si nous augmentons K_e , l'énergie diffuse plus dans le matériau, ce qui conduit à des conditions de température et de densité ne permettant pas d'ablation en surface à moins d'augmenter la

fluence. A l'inverse, une diminution de K_e permet de contenir l'énergie en surface et donc de favoriser une fluence seuil d'ablation plus basse. De la même manière, un coefficient de couplage accru par rapport à sa valeur standard diminue la fluence seuil puisque l'énergie électronique est plus rapidement figée sur les ions, avant la diffusion.

Nous déduisons donc de l'étude précédente qu'une meilleure connaissance des valeurs ou des dépendances des paramètres du modèle à deux températures permettraient d'affiner nos simulations au voisinage du seuil d'ablation. Il s'agit de la gamme d'énergie où les effets sont plus difficilement descriptibles, et pourtant la fluence correspondant au seuil d'ablation est celle qui est privilégiée dans les expériences d'ablation.

Au cours de cette partie consacrée à la description des caractéristiques thermodynamiques et hydrodynamiques du métal, nous avons été amenés à découpler chacune des propriétés en termes électronique et ionique. Ceci nous a permis de rendre compte de l'évolution du système hors d'équilibre thermodynamique et d'en voir les effets sur les grandeurs macroscopiques. En associant celles-ci aux modèles connus d'ablation, nous avons été en mesure de reproduire les caractéristiques de l'éjection de matière à la suite d'une sollicitation laser ultracourte.

Les mesures expérimentales dynamiques sont difficilement accessibles puisqu'elles supposent de pouvoir suivre les propriétés du système avec une échelle de temps de l'ordre de la picoseconde. Nous avons vu qu'il serait souhaitable d'accéder à des mesures de pression interne, ou de vitesse de la face arrière pour disposer de l'évolution de propriétés macroscopiques sur lesquelles nous pourrions ajuster nos modèles. Néanmoins, comme nous venons de le voir, les données statiques de type taux d'ablation sont également comparables à nos simulations, à conditions d'effectuer des hypothèses sur la cinétique et la prépondérance des différents mécanismes. Puisqu'elles recouvrent une grande partie des processus apparaissant pendant et après l'interaction, ces simulations peuvent permettre de valider ou d'infirmer d'autres modèles ou données spécifiques plus rigoureux, en insérant ces résultats dans le code de simulation.

Pour clôturer cette première partie, nous avons inséré dans les pages suivantes la publication relative à l'étude exposée précédemment. Les principaux résultats obtenus dans cette partie sont donc regroupés dans ces quelques pages. Ils sont indépendants de l'étude que nous allons maintenant aborder qui consiste à déterminer et à analyser l'évolution des propriétés optiques du métal au cours et consécutivement à l'irradiation laser.

Hydrodynamic simulations of metal ablation by femtosecond laser irradiation

J. P. Colombier,^{1,2} P. Combis,¹ F. Bonneau,¹ R. Le Harzic,² and E. Audouard²

¹CEA/DAM Ile de France, Dept. de Physique Théorique et Appliquée, B.P. 12, 91680 Bruyères-le-Châtel, France

²Laboratoire Traitement du Signal et Instrumentation (TSI), Université Jean Monnet, UMR CNRS 5516, 42000 Saint-Etienne, France

(Received 17 December 2004; published 6 April 2005)

Ablation of Cu and Al targets has been performed with 170 fs laser pulses in the intensity range of 10^{12} – 10^{14} W cm⁻². We compare the measured removal depth with 1D hydrodynamic simulations. The electron-ion temperature decoupling is taken into account using the standard two-temperature model. The influence of the early heat transfer by electronic thermal conduction on hydrodynamic material expansion and mechanical behavior is investigated. A good agreement between experimental and numerical matter ablation rates shows the importance of including solid-to-vapor evolution of the metal in the current modeling of the laser matter interaction.

DOI: 10.1103/PhysRevB.71.165406

PACS number(s): 61.80.Az, 72.15.Cz, 79.20.Ap

I. INTRODUCTION

Ultrafast phenomena driven by subpicosecond laser pulses have been the subject of thorough investigation for many years in order to explain the ablation of solid materials.^{1–4} As opposed to the laser-dielectric interaction where thermal and athermal ablation regimes probably takes place,^{5–7} the laser-metal interaction is mainly governed by the thermal ablation one.^{6,8} The laser energy is absorbed by the free electrons first. The pulse duration being shorter than the electron-phonon relaxation time ($\tau_{e-ph} \sim 10^{-12}$ s), electrons and ions subsystems must be considered separately. The “two-temperature model” (TTM) describes the thermal transport of energy by the electrons and the energy transfer from the electrons to the lattice.⁹

Numerous theoretical and experimental previous works have been devoted to the study of the matter ablation with a single laser pulse. Experimental irradiation conditions in current applications are largely investigated to optimize the ablation rate: pulse duration,¹⁰ fluence,¹¹ and background gas.^{12,13} However, a complete view including all the relevant physical mechanisms is still lacking. To get a better understanding of the ablation process and to extend the results into situations not covered by the experiments, two kinds of investigations are put at work: (i) a complete identification of the various physical mechanisms responsible for the material removal from the surface and (ii) an evaluation of the impact of these various processes on the amount of ablated matter. In the works previously addressed, few calculations are able to provide a direct comparison with experiments. Most of them are focused on thermal transport and a more detailed description of the physical processes occurring in the material has to be incorporated to really describe the whole ablation process. Among these, works based on hydrodynamic modeling^{1,2,14,15} have been recently associated to the TTM to describe the ablation process. To overcome the drawbacks of a material fluid treatment, a mechanical extension of the TTM has been proposed to model the ultrafast thermomechanical behavior of a metal film.¹⁶ Works based on molecular dynamics allow access to the influence of the ultrafast energy deposition on the thermal and mechanical evolution proper-

ties of the material.^{17,18} With a different approach, other authors have performed a microscopic analysis of the mechanisms of ultrashort pulse laser melting by means of a hybrid molecular-dynamic and fluid modelization.^{3,4}

From all these investigations, it appears that none of these effects may be neglected to reproduce the features of the damage resulting from an ultrashort laser irradiation. Moreover, there is a lack of investigations which combine experimental and theoretical results so that current models are still questionable. In the present simulations, the TTM provides energy deposition in an expanding material intimately correlated with the processes governing the ablation in the ultrashort pulse case, which is a specificity of our hydrodynamic approach. Simulation results give useful insight into the presented experiment data.

Transport properties of electrons are not very well understood in nonequilibrium electron-ion systems. However, the comprehension of these phenomena in the context of ultrafast interaction is essential not only for fundamental purposes but also for micromachining applications. A precise description of the effect of the electronic temperature on the absorption seems to be still unsettled,^{19–21} and it has not been taken into account in the presented calculations. Nevertheless, the model employed in this work uses a large set of current available data.

Obviously, numerical calculations are always requiring additional information such as electron-phonon or electron-electron relaxation times, which may be extracted, from experimental data.^{22,23} Reciprocally, comparison between simulations and experiments allows us to validate physical data introduced into the theoretical models. For instance, we shall see in the following that the measure of the pressure variation with time inside the material would be very informative. These data, however, are difficult to measure with a high accuracy. By contrast, experimental measure of laser ablation rate seems to be easier to be obtained and compared with numerical simulations.

In this article, numerical and experimental results on ablated matter are reported. For this purpose, the TTM is inserted into a hydrodynamic code in order to describe the material removal. First we detail the physical processes which are taken into account in our computations within the

framework of hydrodynamical modeling. Then, the effects caused by relaxation processes on the evolution of shock waves are examined. We next present the experiments that have been performed to obtain ablation depth measurements as a function of the laser fluence. Finally, our discussions are based on the results of numerical simulations on Cu and Al samples compared with specific experimental measurements.

II. THEORETICAL MODEL

To represent numerically the interaction between the laser and the metallic target, we used a 1D Lagrangian hydrodynamic code.²⁴ Solving the Helmholtz wave equation permitted us to determine the electromagnetic field through the region illuminated by the laser. The deposited energy is then deduced using the Joule-Lenz law. A precise result for the absorption from an arbitrary medium can be obtained from the direct solution of the equation for the electromagnetic field. Let us consider a planar wave propagating along the z axis. We write the following Helmholtz equation for the complex amplitude of the electric field E_z with frequency ω :

$$\Delta E_z - \nabla \nabla E_z + \left(1 + i \frac{4\pi}{\omega} \sigma(T, \rho)\right) \frac{\omega^2}{c^2} E_z = 0, \quad (1)$$

where $\sigma(T, \rho)$ is the complex conductivity and c is the light speed. The function σ is calculated as a function of the density $\rho(z)$ and the temperature $T(z)$. The relative permittivity of the medium is supposed to be equal to the unity in the case of a metal target. These simulations need accurate data such as transport coefficients in solids, liquids, vapors, and dense or diluted plasmas, specially refractive indices,²⁵ electric and thermal conductivities,²⁶ and mechanical properties such as material strength. The evolution of the irradiated target is governed by the fluid hydrodynamic and heat diffusion equations connected with a multi-phase equation of state (EOS). Thermodynamic functions that realistically describe characteristics of metal properties in various parts of the phase diagram are needed. Such a set of different metal EOS is generated by means of a numerical tool developed by the authors of Ref. 27. As an illustration of the EOS used, Fig. 1 displays isobars in the phase diagram temperature-specific energy of the copper for a wide range of pressures. Such data reveal the dependence on the thermodynamic properties of the melting and vaporization processes.

The mechanical propagation of shock waves and fracture are also simulated. Elastoplasticity is described by a strain-rate-independent model (relevant to high strain rate conditions at high pressure, typically beyond 10 GPa), which accounts for pressure-, temperature- and strain-dependent yield strength and shear modulus.²⁸ Laser-induced stresses are the combination of the hydrostatic pressure and the response to the shearing deformation. In the temperature range of interest here, the effect of radiative energy transport on the hydrodynamic motion is negligible. Hence we ignore energy transport by radiation when solving the hydrodynamic equations.

Ultrashort laser irradiation and the associated ionic and electronic temperature decoupling require us to introduce specific electronic parameters. We assume that free electrons

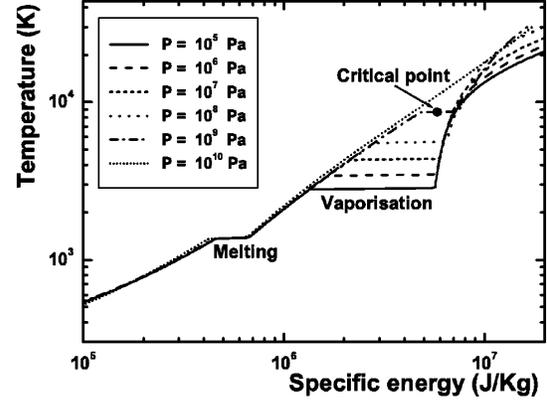


FIG. 1. The representation of isobars in a phase diagram of the copper EOS in the region of phase transitions.

form a thermal distribution during the interaction and use the Fermi-Dirac distribution to determine the electron properties (energy, pressure, and heat capacity) as a function of the density and the temperature.²⁹ The evanescent electromagnetic wave is absorbed by the electrons. In our range of intensity, they are quickly heated at a temperature of few eV. During and after the pulse, the energy diffuses among the electrons and is then transferred to the lattice. Classical heat diffusion plays a significant role as soon as a thermal gradient occurs in the material. Diffusion processes are described by the following equations:

$$\rho C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla (K_e \nabla T_e) - \gamma(T_e - T_i) + S, \quad (2)$$

$$\rho C_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = \nabla (K_i \nabla T_i) + \gamma(T_e - T_i), \quad (3)$$

where T , C , and K are the temperature, the specific heat, and the thermal conductivity, respectively. Indices “e” and “i” stand for electron and ion species. ρ is the mass density. γ characterizes the rate of energy exchange between the two subsystems and S is the space- and time-dependent laser source term determined by the Joule-Lenz law. Introduction of the TTM in a hydro-code allows us to take into account the density dependence of both specific heats and conductivities. $C_e(T_e, \rho)$ is calculated with the Fermi model using ρ -dependent chemical potentials.²⁹ The electron thermal conductivity K_e is commonly expressed in the form³⁰

$$K_e = \alpha \frac{(\theta_e^2 + 0.16)^{5/4} (\theta_e^2 + 0.44)}{(\theta_e^2 + 0.092)^{1/2} (\theta_e^2 + \beta \theta_i)} \theta_e, \quad (4)$$

where θ_e and θ_i are electron and ion temperature normalized to the Fermi temperature ($\theta_e = T_e/T_F$, $\theta_i = T_i/T_F$) and α , β are material-dependent parameters.^{3,31} The linear variation of the coupling term with $(T_e - T_i)$ is classic in TTM: we have taken $\gamma = \gamma_0$ as $3 \times 10^{16} \text{ W K}^{-1} \text{ m}^{-3}$ for copper²² and $3 \times 10^{17} \text{ W K}^{-1} \text{ m}^{-3}$ for aluminum.²⁰ It must be noticed that the values of K_e and γ are subject to considerable uncertainty in literature.³ To accurately describe the ultrafast response,

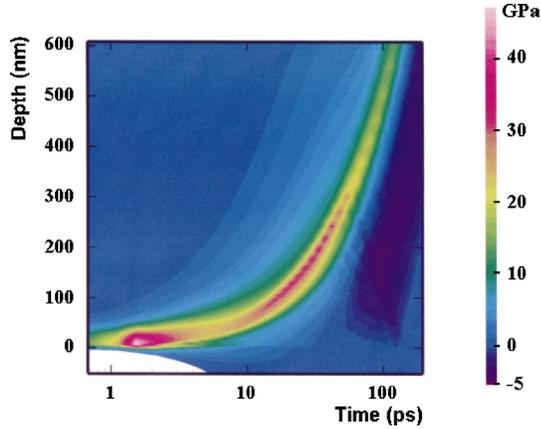


FIG. 2. (Color online) The contour plots of the stress resulting from the irradiation of a copper target by a 170 fs, 10 J cm^{-2} laser pulse.

we incorporate electronic pressure into the set of hydrodynamic equations. The system of equations for electron and ion subsystems can be written in the Lagrangian form:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \varepsilon_e}{\partial t} &= -p_e \frac{\partial V}{\partial t}, & \frac{\partial \varepsilon_i}{\partial t} &= -p_i \frac{\partial V}{\partial t}, \\ \frac{\partial u}{\partial t} &= -\frac{\partial}{\partial m}(p_e + p_i), & \frac{\partial V}{\partial t} &= \frac{\partial u}{\partial m}, \end{aligned} \quad (5)$$

where u is the fluid velocity, m is the mass and V is the specific volume. p_e , ε_e , p_i , ε_i are the pressure and the specific energy of electrons and ions. Equations (2)–(5) connected with a multiphase equation of state (EOS)²⁷ constitute a self-consistent description of the matter evolution. However, the pressure $p(T_e = T_i)$ provided by this EOS is the sum of the electronic and ionic pressures at the equilibrium and has to be replaced by the sum of these two contributions out of equilibrium. The electronic pressure is independently determined by means of the standard fermion gas model. As a consequence, the total pressure used in the above calculations is determined as $p(T_e \neq T_i) = p_e(T_e) - p_e(T_i) + p_i(T_i)$.

III. SIMULATIONS AND ANALYSIS

To start with, the interaction of a 10 J cm^{-2} , 170 fs FWHM Gaussian pulse at 800 nm wavelength with a copper target is investigated. Figure. 2 shows the space-time evolution of the induced stress. The metal surface is heated to a maximum of 2950 K, 30 ps after the irradiation. At this time, the free surface expands in a liquid state with a velocity of 400 ms^{-1} . Due to the electron heating, an electronic compression wave appears at the end of the laser pulse. The electron-ion energy exchange results in a significant increase in the ionic pressure, which propagates inside the metal. Behind the shock, tensile stress occurs associated with very high strain rate around 10^9 s^{-1} .

In order to study the sensitivity of the above results with respect to the physical parameters, we compare in Fig. 3 the

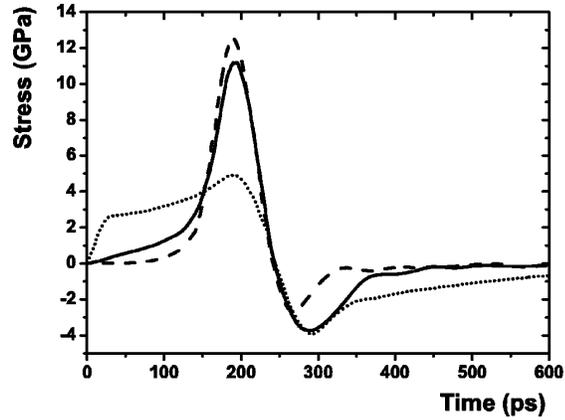


FIG. 3. The time evolution of the stress in copper at $1 \mu\text{m}$ depth resulting from a 170 fs, 10 J cm^{-2} laser pulse. Standard conditions : $\gamma = \gamma_0$ and $K_e = K_{e_0}$ (solid line), $\gamma = 5 \gamma_0$ (dashed line), and $K_e = 10 K_{e_0}$ (dotted line).

time variation of the computed stress at $1 \mu\text{m}$ depth under standard conditions ($\gamma = \gamma_0$ and $K_e = K_{e_0}$) with those obtained with an increased coupling factor or electronic conductivity.

In the first hundred picoseconds, the stress growth is directly related to the heating depth. The increased coupling factor leads to a steeper thermal gradient and a lower temperature at $1 \mu\text{m}$ depth compared to the other situations. The resulting stress is therefore lower in this case. The peak of the shock wave, propagating from the surface, reaches the $1 \mu\text{m}$ depth at 200 ps. Increasing the coupling factor accelerates the energy transfer from the electrons to the lattice and results in higher compression. Inversely, an enhanced electronic conductivity spreads the energy spatial profile and yields reduced stresses. It must be noticed that in the three cases, the compression is followed by a high tensile stress greater than the characteristic tensile strength of the material. Nevertheless, the loading in tension is not long enough (150 ps) to induce a fracture in the medium.^{32,33} The shock duration and intensity provide a good signature of the balance between the electronic diffusion and the electron-ion coupling. Further improvements will be discussed in the following.

To obtain local information on the energy transfer induced by a femtosecond laser irradiation, a high-resolution time measurement of the stress reaching the rear side of a thin sample could be achieved.^{34,35} Such experimental records could be directly compared with our simulations which would led us to refine the (γ, K_e) physical values accordingly. To validate the computation, we performed ablation measurements and compared them to the current simulations using standard values of (γ, K_e) for aluminum and copper samples.

IV. EXPERIMENT DETAILS

Ultrashort laser pulses are generated by an amplified all solid-state Ti:sapphire laser chain. Low energy pulses are

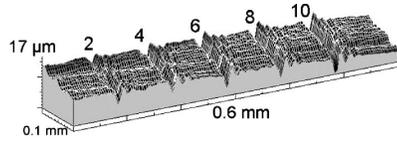


FIG. 4. The SEM picture of machined-groove profiles, from two to ten passes, on a copper sample.

extracted from a mode-locked oscillator (1.6 nJ/pulse, 80 MHz, 800 nm, 120 fs). The pulses are then injected into an amplifying chain including an optical pulse stretcher, a regenerative amplifier associated with a two-pass amplifier using a 20 W Nd:YLF laser as pumping source, and a pulse compressor. Linearly polarized pulses with wavelength centered around 800 nm, an energy of 1.5 mJ at 1 kHz repetition rate, and typical duration of 170 fs were delivered. The samples are mounted on a three-motorized-axes system with 0.5 μm accuracy. Experiments are performed in the image plane of an aperture placed before the objective. The resulting spatial laser profile on sample is “top hat” so that borders and spurious conical drilling effects are reduced. Focusing objectives of 25 or 10 mm focal lengths are used to obtain fluences in a range of 0.5 to 35 J cm^{-2} with the same beam size, 16 μm in diameter, in the image plane.

For ablation depth measurements, grooves are machined by moving the sample.³⁶ The sample speed is adapted such that each point on the groove axis undergoes eight consecutive irradiations at each target pass. The number of times the sample passes in front of the fixed beam can be adjusted. Figure 4 shows a scanning electron microscopy (SEM) picture of the machined grooves on copper for two, four, six, eight, and ten passes. The groove depth is measured using an optical profilometer with a 10 nm depth resolution. The ablation rates for each groove are deduced taking into account the sample speed, the repetition rate of the laser, the beam size, and the number of passes. For each energy density, an averaged ablation rate is determined and the number of passes has been chosen to obtain reproducible results. From these experiments on copper and aluminum targets, we evaluate, for different fluences, an ablation depth averaged over a few tens of laser shots. The theoretical ablation depth is deduced from 1D numerical simulations using a criterion discussed hereafter.

V. RESULTS AND DISCUSSION

At moderate fluence, the propagation of the shock wave induced by the energy deposition on the lattice causes the surface expansion at very high speed and significant nonuniform strain rates. Simultaneously, the surface of the target is melted or vaporized as soon as the conditions of temperature and density required are fulfilled. High strain rates can turn the liquid region into an ensemble of droplets and ablation follows. This process is called the homogeneous nucleation.³⁷ Unfortunately, quantitative values on the formation and ejection of liquid droplets are difficult to access because the interfacial solid-liquid microscopic properties of

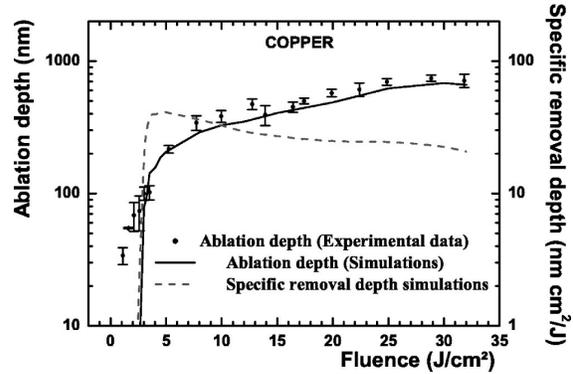


FIG. 5. The experimental and numerical (solid line) ablation depth as a function of the laser fluence on a copper target obtained with a 170 fs laser pulse. The dashed line shows evolution of the specific removal rate.

the nucleation centers are not accurately known. Nevertheless, in our simulation we can consider that the liquid layer accelerated outside the target corresponds to the ablated matter. Large values of strain rates (10^9 s^{-1}) indeed signal that droplet formation may occur and are sufficient to produce ablation. At higher fluence, the surface is strongly vaporized. The gas expands near the free surface and compresses the internal matter. The vaporized part of the target added to the fraction of the above-defined liquid layer constitute the calculated ablated matter. Experimental results on ablation of copper and aluminum are compared with the numerical estimates in Figs 5 and 6.

Sharp numerical ablation thresholds are visible at 3 and 0.5 J cm^{-2} for Cu and Al targets, respectively. At high fluence, the ablation saturates for both materials. This saturation occurs mainly for two reasons. Vaporization and subsequent gas expansion consume energy that does not contribute to the ablation process. Moreover, the liquid layer confinement

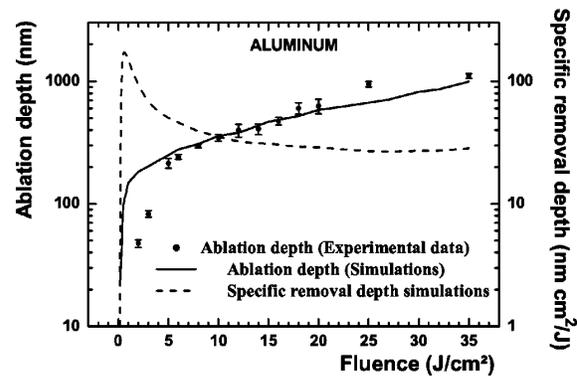


FIG. 6. The experimental and numerical (solid line) ablation depth as a function of the laser fluence on an aluminum target obtained with a 170 fs laser pulse. The dashed line shows evolution of the specific removal rate.

increases as far as the gas expands and limits the liquid removal.

As defined by Feit *et al.*,⁷ a specific removal depth, i.e., depth removed per unit of incident fluence, could be a relevant parameter to estimate the ablation efficiency at a fixed pulse duration. Calculations of this quantity are carried out as a function of the laser fluence. The dashed curve presented in Fig. 6 indicates a maximum value of 0.5 J cm^{-2} in the aluminum case. The curve is smoother for copper in Fig. 5 and the maximum specific removal depth is reached at a fluence around 5 J cm^{-2} . This point corresponds to the occurrence of a critical behavior which confirms a change in the hydrodynamic behavior. While the thickness of the liquid layer grows with the incident energy, the specific removal depth rises. Afterwards, when the gas expansion starts, a growing part of the laser energy is transformed in kinetic energy and the specific removal depth drops. This suggests that an optimum material removal exists and refers to the situation when the surface vaporization is limited. It appears that this quantity is relevant for material processing which can be optimized by operating at this optimal fluence.

At low fluence, a noticeable discrepancy arises between the experimental and numerical results. The calculated ablated matter for a copper target is below the experimental results, while for an aluminum target, numerical results are above. We suspect that electron transport properties should be further improved. It has been shown that a significant decrease in the electrical conductivity may take place as a result of the electronic temperature increase,¹⁹ which our model discards. However, the experimental measurements and the theoretical calculations come to a reasonable agreement at higher fluence. As it has been shown by Fisher *et al.*,²⁰ in the vicinity of an 800 nm wavelength, the interband absorption occurring in an aluminum target decreases with increasing temperature. The authors show that, with 50 fs laser pulses, the absorption coefficient presents a minimum near the ablation threshold, at $5 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$ laser intensity. The evolution of interband absorption with the temperature is not taken into account in our calculations. Consequently, we may overestimate the energy absorbed in this intensity region.

For copper, the simulation overestimates the ablation threshold. This can be due to a deficit of physical process comprehension or to the inaccuracy of the parameters introduced in the model. No single value of γ or K_e can perfectly fit the sets of data shown in Figs. 5 and 6. As for the discussion of pressure presented above, one can think that a change in γ or K_e has a similar effect on the threshold fluence F_{Th} . Therefore, it is interesting to investigate the fluence threshold dependence on γ and K_e . A parametric analysis has been performed for a copper target. Figure 7 displays the threshold fluence which has been obtained for different parameter couples $(\gamma, K_e=K_{e0})$ and $(\gamma=\gamma_0, K_e)$. The deposited energy with lower thermal conductivity or higher coupling factor can penetrate deeper into the material. As a consequence, F_{Th} is lowered with respect to that of the reference case (γ_0, K_{e0}) and would be comparable with experimental data in the vicinity of the threshold. However, simulations performed in these conditions have shown a higher disagreement with experimental data at higher fluence due to an earlier expanded

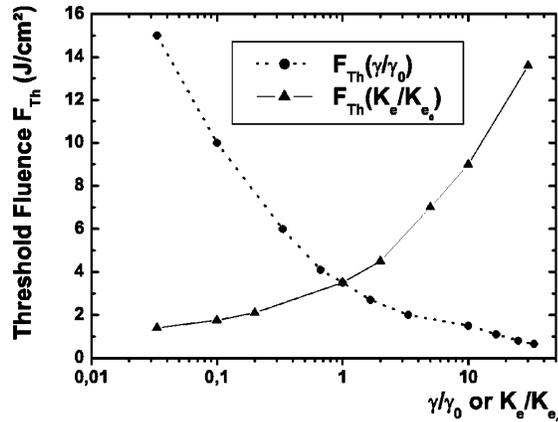


FIG. 7. The calculation of the threshold fluence dependence on the coupling parameter γ and the electronic conductivity K_e for copper. Simulations are performed for different ratios of the standard value of one parameter remaining and the second one constant. Consequently, the intersection of curves coincides with the value used in the calculation of the ablation rate presented in Fig. 5.

vapor. On the contrary, for a reduced γ or an enhanced K_e value, F_{Th} increased and the ablation depth at high fluence is overestimated.

Results obtained with one-temperature simulations evidence the importance of the TTM to reproduce the experimental results. The good agreement obtained between experimental data and simulations underlines the need of coupling the TTM model with a hydrodynamic code for ablation simulations in metals. Numerical results presented in this paper give an overall description of processes occurring during ultrashort laser ablation experiments.

VI. CONCLUSION

In this paper, we have reported new results on the interaction of femtosecond laser pulses with metal targets at intensities up to $10^{14} \text{ W cm}^{-2}$. Numerical computations were carried out by means of a 1D hydrodynamic code describing the laser field absorption and the subsequent phase transitions of matter. Simulations were compared to original ablation experiments performed on aluminum and copper samples. The behavior of the ablation depth as a function of laser fluence confirms the importance of the use of a specific two-temperature equation of state and hydrodynamics. An optimum condition for laser fluence has been identified and could provide a precious information for efficient material processing. We have highlighted that the ablation process is not only governed by electronic diffusion but also by the high shock formation and propagation. The differences between experimental and numerical results remain, however, more pronounced for low laser fluences.

We took great care to extend the metal properties to the nonequilibrium case. Nevertheless, inclusion of realistic material parameters, such as the sophisticated band structure of metals or various scattering mechanisms, would allow calcu-

lations with more accuracy. Also, a full nonequilibrium treatment should take into account the conductivity dependence with both electron-electron and electron-phonon collisions. This work is in progress and implies an elaborate optical absorption model more suitable for ultrashort laser pulse.

Simulations suggest that the in-depth stresses induced by an ultrashort laser pulse provide information of the matter

dynamics in time, with which experimental pressure measurements could be compared. In particular, because it develops over temporal scales larger than the energy deposition one, the characteristic shape of the delayed shock conveys information about the interaction physics and it should thus supply a promising way for exploring matter distortions upon picosecond time scales.

-
- ¹A. M. Komashko, M. D. Feit, A. M. Rubenchik, M. D. Perry, and P. S. Banks, *Appl. Phys. A: Mater. Sci. Process.* **A69**, Suppl. S95 (1999).
- ²S. Laville, F. Vidal, T. W. Johnston, O. Barthélemy, M. Chaker, B. Le Droff, J. Margot, and M. Sabsabi, *Phys. Rev. E* **66**, 066415 (2002).
- ³C. Schäfer, H. M. Urbassek, and L. V. Zhigilei, *Phys. Rev. B* **66**, 115404 (2002).
- ⁴D. S. Ivanov and L. V. Zhigilei, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 105701 (2003).
- ⁵R. Stoian, A. Rosenfeld, D. Ashkenasi, I. V. Hertel, N. M. Bulgakova, and E. E. B. Campbell, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 097603 (2002).
- ⁶N. M. Bulgakova, R. Stoian, A. Rosenfeld, I. V. Hertel, and E. E. B. Campbell, *Phys. Rev. B* **69**, 054102 (2004).
- ⁷M. D. Feit, A. M. Komashko, A. M. Rubenchik, *Appl. Phys. A: Mater. Sci. Process.* **79**, 1657 (2004).
- ⁸E. G. Gamaly, A. V. Rode, B. Luther-Davies, and V. T. Tikhonchuk, *Phys. Plasmas* **9**, 949 (2002).
- ⁹S. I. Anisimov, B. L. Kapeliovich, and T. L. Perel'man, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **66**, 776 (1974) [*Sov. Phys. JETP* **39**, 375 (1974)].
- ¹⁰B. Sallé, O. Gobert, P. Meynadier, M. Perdrix, G. Petite, and A. Semerok, *Appl. Phys. A: Mater. Sci. Process.* **A69**, Suppl. S381 (1999).
- ¹¹S. Nolte, C. Momma, H. Jacobs, A. Tnnermann, B. N. Chichkov, B. Wellegehausen, and H. Welling, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 2716 (1997).
- ¹²A. E. Wynne, B. C. Stuart, *Appl. Phys. A: Mater. Sci. Process.* **A76**, 373 (2003).
- ¹³S. Preuss, A. Demchuk, and M. Stuke, *Appl. Phys. A: Mater. Sci. Process.* **A61**, 33 (1995).
- ¹⁴K. Eidmann, J. Meyer-ter-Vehn, T. Schlegel, and S. Hiller, *Phys. Rev. E* **62**, 1202 (2000).
- ¹⁵Y. V. Afanasiev, B. N. Chichkov, N. N. Demchenko, V. A. Isakov, and I. N. Zvestovskaya, 28th Conference on Controlled Fusion and Plasma Phys. Funchal, ECA 25A, (2001), p. 2021.
- ¹⁶J. K. Chen, J. E. Beraun, L. E. Grimes, and D. Y. Tzou, *Int. J. Solids Struct.* **39**, 3199 (2002).
- ¹⁷D. Perez and L. J. Lewis, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 255504 (2002).
- ¹⁸P. Lorazo, L. J. Lewis, and M. Meunier, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 225502 (2003).
- ¹⁹H. M. Milchberg, R. R. Freeman, S. C. Davey, and R. M. More, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2364 (1988).
- ²⁰D. Fisher, M. Fraenkel, Z. Henis, E. Moshe, and S. Eliezer, *Phys. Rev. E* **65**, 016409 (2001).
- ²¹B. Rethfeld, A. Kaiser, M. Vicanek, and G. Simon, *Phys. Rev. B* **65**, 214303 (2002).
- ²²P. B. Corkum, F. Brunel, N. K. Sherman, and T. Srinivasan-Rao, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2886 (1988).
- ²³V. E. Gusev and O. B. Wright, *Phys. Rev. B* **57**, 2878 (1998).
- ²⁴F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier, J. Vierne, B. Bertussi, M. Commandré, L. Gallais, J. Y. Natoli, I. Bertron, F. Malaise, and J. T. Donohue, *Appl. Phys. B: Lasers Opt.* **B78**, 447 (2004).
- ²⁵E. Palik, *Hand book of Optical Constants of Solids* (Academic, London 1985).
- ²⁶W. Ebeling, A. Förster, V. Fortov, V. Griaznov, and A. Polishchuk: *Thermophysical Properties of Hot Dense Plasmas* (Teubner, Stuttgart 1991).
- ²⁷A. V. Bushman, I. V. Lomonosov, and V. E. Fortov, *Sov. Technol. Rev. B* **5**, 1 (1993).
- ²⁸D. J. Steinberg, S. G. Cochran, and M. W. Guinan, *J. Appl. Phys.* **51**, 1498 (1980).
- ²⁹N. W. Ashcroft and N. D. Mermin, *Solid State Physics* (Saunders College, New York, 1976).
- ³⁰S. I. Anisimov and B. Rethfeld, *Proc. SPIE* **3093**, 192 (1997).
- ³¹X. Y. Wang, D. M. Riffe, Y.-S. Lee, and M. C. Downer, *Phys. Rev. B* **50**, 8016 (1994).
- ³²F. R. Tuler, and B. M. Butcher, *Int. J. Fract. Mech.* **4**, 431 (1968).
- ³³V. I. Romanchenko and G. V. Stepanov, *J. Appl. Mech. Tech. Phys.* **21**, 555 (1981).
- ³⁴L. Tollier and R. Fabbro, *J. Appl. Phys.* **83**, 1224 (1997).
- ³⁵J. P. Romain, F. Bonneau, G. Dayma, M. Boustie, T. de Rességuier, and P. Combis, *J. Phys.: Condens. Matter* **14**, 10793 (2002).
- ³⁶R. Le Harzic, Ph.D. thesis, Université de Saint-Etienne, 2002.
- ³⁷B. Rethfeld, K. Sokolowski-Tinten, D. Von der Linde, and S. I. Anisimov, *Phys. Rev. B* **65**, 092103 (2002).

Deuxième partie

Evolution ultrarapide des propriétés optiques

Dans cette partie, nous allons plus précisément aborder la modélisation de l'absorption optique dans le cas des impulsions ultracourtes. Nous commencerons par expliciter le modèle que nous avons utilisé, ainsi que les hypothèses effectuées. De par sa nature fondamentale, le début de ce chapitre pourra paraître un peu formel. Néanmoins il est indispensable pour appréhender l'origine des propriétés particulières qui découlent de l'absorption d'une onde électromagnétique subpicoseconde.

Nous verrons ensuite comment l'évolution des propriétés optiques a été prise en compte à travers le déséquilibre électron-ion, notamment en fonction de la température électronique. Nous comparerons les résultats que nous avons obtenus avec des expériences, plus ou moins récentes afin d'identifier les processus liés à la transition solide-plasma du métal. Ainsi, cette transition s'accompagne d'effets observables par des mesures de propriétés optiques intégrées ou résolues en temps.

Enfin, nous présenterons les enseignements que nous pouvons tirer de ce modèle ainsi que ce qu'il peut nous apporter pour prévoir quelques expériences intéressantes. Nous dégagerons alors la pertinence de certains paramètres dont l'évolution pourra être mesurée expérimentalement. Enfin nous verrons quelles démarches peuvent être proposées pour optimiser et interpréter les expériences associées en appliquant notre étude à la mise en forme temporelle d'impulsions.

Neil Ashcroft & David Mermin, Physique des solides

S'il n'y avait aucune théorie quantique microscopique sous-jacente des électrons dans les solides, on pourrait encore imaginer une mécanique semi-classique (devinée par quelques Newton des espaces cristallins de la fin du XIX^{ème} siècle) qui serait brillamment confirmée par l'explication qu'elle donne du comportement électronique observé, tout comme la mécanique classique a été confirmée par son explication du mouvement planétaire, et seulement bien après démontrée de manière plus fondamentale en tant que forme limite de la mécanique quantique.

Description dynamique des états électroniques

Les états décrivant l'électron et son mouvement dans le potentiel produit par le réseau cristallin vont faire l'objet d'une présentation simple. Le but est ici de donner une définition et une notation aux concepts de physique du solide nécessaires à notre étude sans toutefois s'attarder sur des démonstrations complexes. Ces dernières pourront être trouvées pour leur plus grande partie dans les références [10] et [59]. Nous serons amenés à chercher les états propres associés au Hamiltonien composé d'un Hamiltonien relatif au métal à l'équilibre $\hat{\mathcal{H}}_0$, du Hamiltonien $\hat{\mathcal{H}}_{Abs}$ décrivant l'effet du champ électromagnétique sur le système et d'un Hamiltonien comprenant l'interaction des particules entre elles, $\hat{\mathcal{H}}_{Int}$:

$$\hat{\mathcal{H}} = \hat{\mathcal{H}}_0 + \hat{\mathcal{H}}_{Abs} + \hat{\mathcal{H}}_{Int} \quad (6.1)$$

L'origine et l'influence de chacun de ces termes vont être détaillées dans les trois prochains paragraphes. Nous verrons que nous serons amenés à faire des approximations sur les états correspondant au Hamiltonien total :

$$\hat{\mathcal{H}} = \sum_{i=1}^{Ne} \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla_i^2 + V_{ion}(\vec{r}_i) \right] - i \frac{e\hbar}{mc} \vec{A} \cdot \vec{\nabla} + \frac{1}{2} \sum_{i \neq j}^{Ne} \frac{e^2}{|\vec{r}_i - \vec{r}_j|} \quad (6.2)$$

Dans une première section, nous décrirons les états statiques de notre système au moyen d'ondes de Bloch. Nous nous intéresserons ensuite à l'expression de la conductivité électrique après avoir développé le Hamiltonien d'absorption. Enfin, nous formulerons une prise en compte des interactions à travers la somme des contributions électron-électron et électron-phonon.

6.1 Equation d'onde de Bloch - Structure de bandes

Nous nous proposons dans cette section de définir de manière simple la base sur laquelle s'appuie la modélisation des états électroniques. Nous avons été contraints d'adopter une description de ceux-ci plus complexe que dans la première partie. En effet, le modèle des électrons libres de Sommerfeld est pris en défaut lorsque nous souhaitons prendre en compte l'influence du réseau cristallin sur la population électronique [10, 59]. Celle-ci évolue dans un potentiel créé par les ions du cristal que nous noterons $\mathcal{U}(\vec{r})$. La périodicité du potentiel subi par les électrons est la même que celle du réseau d'ions :

$$\mathcal{U}(\vec{r} + \vec{R}) = \mathcal{U}(\vec{r}) \quad \forall \vec{R} \text{ du réseau cristallin}$$

Par simplicité, nous supposons tout d'abord que l'effet des interactions coulombiennes entre électrons peut être négligé. Cette hypothèse n'est pas justifiée, auquel cas le métal ne serait pas électriquement neutre. En effet cette neutralité résulte d'une densité de charge ionique compensée par la densité de charge électronique. Ceci implique que la force d'interaction entre électrons doit être comparable à la force du potentiel induit par le réseau cristallin. Une simple estimation de l'ordre de grandeur de l'énergie d'interaction au sein d'une cellule de dimension proche du paramètre de maille $a_0 = 2\text{\AA}$ nous conduit à $\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 a_0} \sim 3 \text{ eV}$. Néanmoins, l'effet d'un potentiel périodique cristallin peut être considéré comme petit et conduit à l'approximation d'électrons quasi-libres.

L'énergie des électrons dans le solide peut être décrite comme la somme des énergies cinétiques, du potentiel ionique agissant individuellement sur les électrons. Donc pour un système de N_e électrons, le Hamiltonien s'écrit :

$$\hat{\mathcal{H}}_0 = \sum_{i=1}^{N_e} \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla_i^2 + V_{ion}(\vec{r}_i) \right] \quad (6.3)$$

où \vec{r}_i représente la position de l'électron indicé i , V_{ion} est le potentiel dû au réseau cristallin. Les états propres d'un électron sans interaction, c'est à dire pour lequel nous négligeons le second terme de l'équation (6.3), sont des fonctions de Bloch. La fonction d'onde s'écrit comme le produit d'une onde plane et d'une fonction ayant la périodicité du réseau réciproque :

$$\psi_{n,\vec{k}} = e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} u_{n,\vec{k}}(\vec{r}) \quad (6.4)$$

où $u_{n,\vec{k}}$ a la périodicité du réseau. Il existe plusieurs solutions discrètes de l'équation de Schrödinger. Les solutions ainsi que les valeurs propres en énergie notée $\varepsilon_{n,\vec{k}}$ sont repérées par un indice de bande noté n . Les états propres sont caractérisés par deux nombres quantiques, l'indice de bande n et un vecteur d'onde \vec{k} s'étendant dans toute la première zone de Brillouin du cristal. Nous pouvons attribuer les indices n aux niveaux de telle sorte que, pour un n donné,

les fonctions propres et les valeurs propres soient des fonctions périodiques de \vec{k} dans le réseau réciproque :

$$\begin{aligned}\psi_{n,\vec{k}+\vec{\mathcal{K}}}(\vec{r}) &= \psi_{n,\vec{k}}(\vec{r}) \\ \varepsilon_{n,\vec{k}+\vec{\mathcal{K}}} &= \varepsilon_{n,\vec{k}}\end{aligned}\quad (6.5)$$

L'onde de Bloch (6.4) peut être considérée comme une superposition d'ondes planes, chacune ayant un vecteur d'onde $(\vec{k}+\vec{\mathcal{K}})$ où $\vec{\mathcal{K}}$ est un vecteur du réseau réciproque. Il faut remarquer que l'opérateur quantité de mouvement $\vec{p} = (\hbar/i)\vec{\nabla}$, agit sur la fonction d'onde $\psi_{n,\vec{k}}$ de la manière suivante :

$$\begin{aligned}\frac{\hbar}{i}\vec{\nabla}\psi_{n,\vec{k}} &= \frac{\hbar}{i}\vec{\nabla}\left[e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}u_{n,\vec{k}}(\vec{r})\right] \\ &= \hbar\vec{k}\psi_{n,\vec{k}} + \frac{\hbar}{i}e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}\vec{\nabla}u_{n,\vec{k}}(\vec{r})\end{aligned}\quad (6.6)$$

Il apparaît ainsi que $\psi_{n,\vec{k}}$ n'est pas un état propre de l'opérateur de quantité de mouvement, autrement dit la quantité $\hbar\vec{k}$ n'est pas la quantité de mouvement de l'électron, et elle est appelée *moment cristallin*. Le vecteur d'onde \vec{k} qui apparaît dans le vecteur d'onde de Bloch peut toujours être ramené dans la 1^{ère} zone de Brillouin puisque tout \vec{k}' n'appartenant pas à la 1^{ère} zone de Brillouin peut s'écrire $\vec{k}' + \vec{\mathcal{K}} = \vec{k}$.

Si les niveaux d'énergie de l'électron dans un potentiel périodique s'expriment de manière discrète, leur dépendance en vecteur d'onde \vec{k} est continue et nous voyons apparaître ainsi la structure dite « de bandes » du solide. Pour chaque n , l'ensemble des niveaux d'énergie décrits par $\varepsilon_n(\vec{k})$ est appelé bande d'énergie. Puisque la périodicité du réseau réciproque s'exprime dans la périodicité de $\varepsilon_n(\vec{k})$, les bandes d'énergie sont bornées en vecteur d'onde. L'état fondamental d'un système à N_e électrons est construit en remplissant tous les niveaux d'énergies de plus basses énergies de telle sorte que certaines bandes soient partiellement remplies. L'énergie du niveau le plus haut, correspondant à l'énergie de Fermi ε_F , se trouve dans l'intervalle d'énergie de l'une ou de plusieurs bandes d'énergie. Il y aura alors une surface dans l'espace des \vec{k} séparant les niveaux occupés de ceux qui ne le sont pas. L'ensemble de toutes ces surfaces est appelé *surface de Fermi*. Il s'agit de la généralisation de la sphère de Fermi des électrons libres aux électrons de Bloch.

Nous avons ainsi donné une formulation du Hamiltonien à l'équilibre de notre système, et des fonctions propres qui en découlent. Celles-ci s'écrivent sous la forme de fonctions de Bloch auxquelles sont associées des énergies de bandes dans le réseau cristallin. Sur cette base, nous allons donner une écriture des Hamiltoniens d'absorption et d'interaction, qui régissent la dynamique du système et à partir desquelles nous pourrions déterminer les propriétés de transport optique qui nous intéressent.

6.2 Réponse au champ électromagnétique - Conductivité électrique

Nous allons considérer à présent la réponse du système d'électrons à un champ électromagnétique transverse qui varie en espace et en temps et satisfaisant les équations de Maxwell :

$$\vec{\mathcal{E}} = \mathcal{E}_0 e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)} \vec{u}_e \simeq \mathcal{E}_0 e^{-i\omega t} \vec{u}_e \quad (6.7)$$

où \vec{k} représente le vecteur d'onde de l'irradiation dans le cristal. L'approximation $\exp(i\vec{k} \cdot \vec{r}) \simeq 1$ effectuée dans (6.7) s'appelle approximation des grandes longueurs d'onde [116]. Elle consiste à supposer que la longueur sur laquelle le champ électrique appliqué varie est beaucoup plus grande que la constante du réseau¹.

Le Hamiltonien d'interaction électron-photon associé à ce champ peut s'écrire au 1^{er} ordre en \vec{A} [28] :

$$\hat{\mathcal{H}}_{Abs} = \frac{e}{m} \vec{p} \cdot \vec{A} = -\frac{ie}{m\omega} \vec{p} \cdot \vec{\mathcal{E}} = -\frac{e\hbar}{m\omega} \mathcal{E}_0 e^{-i\omega t} \vec{\nabla} \cdot \vec{u}_e \quad (6.8)$$

où \vec{A} représente le potentiel vecteur du champ électromagnétique et est relié à celui-ci par la jauge de Coulomb $\vec{A} = -i\vec{\mathcal{E}}/\omega$. Les variables m et e sont respectivement la masse et la charge de l'électron. Enfin, la quantité de mouvement \vec{p} est la quantité de mouvement de l'électron agissant avec l'irradiation.

L'équation de Liouville décrit l'évolution temporelle d'une densité de population dans l'espace des phases. Elle est équivalente aux équations de Hamilton et s'écrit conventionnellement :

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = [\hat{\mathcal{H}}, \rho] = \hat{\mathcal{H}}\rho - \rho\hat{\mathcal{H}}$$

La linéarisation de cette équation s'écrit en terme de matrice densité au 1^{er} ordre :

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{Abs}}{\partial t} = \hat{\mathcal{H}}_{Abs} \rho_0 - \rho_0 \hat{\mathcal{H}}_{Abs} + \hat{\mathcal{H}}_0 \rho_{Abs} - \rho_{Abs} \hat{\mathcal{H}}_0 \quad (6.9)$$

Nous prendrons les éléments de matrice entre deux états propres que nous indiquerons n et n' . En remarquant que $\rho_{0_{n'n}} = f\delta_{nn'}$ et $\hat{\mathcal{H}}_{0_{nn'}} = \mathcal{E}_n \delta_{nn'}$ où \mathcal{E}_n est l'énergie cinétique, l'équation (6.9) devient :

$$i\hbar \frac{\partial \rho_{Abs_{n'n}}}{\partial t} = [f(\mathcal{E}_n) - f(\mathcal{E}_{n'})] \hat{\mathcal{H}}_{Abs_{n'n}} + \rho_{Abs_{n'n}} (\mathcal{E}_{n'} - \mathcal{E}_n) \quad (6.10)$$

¹En effet, si nous estimons que la longueur d'onde de la radiation dans le cristal est à peu près la même que celle dans le vide λ et que $\|\vec{r}\|$ est proche de la constante du réseau a_0 , nous avons $\|\vec{K}\| \simeq \frac{2\pi}{\lambda}$ et $\|\vec{K} \cdot \vec{r}\| \simeq \frac{2\pi a_0}{\lambda} \sim 10^{-3}$ dans le visible.

Puisque $\hat{\mathcal{H}}_{Abs}$ et ρ_{Abs} ont la même dépendance temporelle, la dérivée temporelle sur ρ_{Abs} peut être remplacée par $-i\omega + \alpha$ et l'équation (6.10) admet pour solution :

$$\rho_{Abs_{n'n}} = \frac{f(\mathcal{E}_{n'}) - f(\mathcal{E}_n)}{\mathcal{E}_{n'} - \mathcal{E}_n - \hbar\omega - i\hbar\alpha} \mathcal{H}_{Abs_{n'n}}$$

L'élément de matrice $\hat{\mathcal{H}}_{Abs_{n'n}}$ s'écrit en terme d'états propres lors de la transition entre l'état ψ_n et l'état $\psi_{n'}$:

$$\hat{\mathcal{H}}_{Abs_{n'n}} = -\frac{e\hbar}{m\omega} \vec{\mathcal{E}} \cdot \int d\vec{r} \psi_{n'}^*(\vec{r}) \vec{\nabla} \psi_n(\vec{r})$$

Cette quantité sans le facteur $\vec{\mathcal{E}}$ est appelée *force d'oscillateur*. En exprimant la moyenne spatiale de la densité de courant $\vec{\mathcal{J}} = e\vec{p}/m\Omega$, où Ω est le volume de la sphère de Fermi, nous obtenons le produit du tenseur de conductivité que nous recherchons par le vecteur champ électromagnétique :

$$\begin{aligned} \langle \vec{\mathcal{J}} \rangle &= \text{Tr}(\vec{\mathcal{J}}\rho) = \sum_{nn'} \rho_{n'n} \left\langle \psi_n \left| -\frac{e\hbar}{im\Omega} \vec{\nabla} \right| \psi_{n'} \right\rangle \\ &= -\frac{ie^2\hbar^2}{m^2\omega\Omega} \sum_{nn'} \frac{f(\mathcal{E}_{n'}) - f(\mathcal{E}_n)}{\mathcal{E}_{n'} - \mathcal{E}_n - \hbar\omega - i\hbar\alpha} \langle \psi_n | \vec{\nabla} | \psi_{n'} \rangle \langle \psi_{n'} | \vec{\nabla} | \psi_n \rangle \cdot \vec{\mathcal{E}} \end{aligned} \quad (6.11)$$

La partie réelle de la conductivité se déduit de l'expression précédente en faisant tendre α vers 0. Le dénominateur de l'équation (6.11) se comporte alors comme une fonction de Dirac, fortement piquée en $\mathcal{E}_{n'} - \mathcal{E}_n - \hbar\omega = 0$ et en $\mathcal{E}_{n'} - \mathcal{E}_n + \hbar\omega = 0$. Cette limite conduit à la formule de *Kubo-Greenwood* pour la partie réelle de la conductivité :

$$\begin{aligned} \lim_{\alpha \rightarrow 0} \Re_e \sigma_{ij} &= -\frac{\pi e^2 \hbar^2}{m^2 \omega \Omega} \sum_{nn'} [f(\mathcal{E}_{n'}) - f(\mathcal{E}_n)] \times [\delta(\mathcal{E}_{n'} - \mathcal{E}_n - \hbar\omega) - \delta(\mathcal{E}_{n'} - \mathcal{E}_n + \hbar\omega)] \\ &\quad \times \langle \psi_n | \nabla_i | \psi_{n'} \rangle \langle \psi_{n'} | \nabla_j | \psi_n \rangle \end{aligned} \quad (6.12)$$

Nous pouvons remarquer que dans le cas qui intéresse notre étude, la contribution est positive pour l'absorption d'un photon et est piquée en $\mathcal{E}_{n'} = \mathcal{E}_n + \hbar\omega$. Cette expression nous sera utile au (§ 7.3.2) pour insérer la contribution des processus interbandes.

6.3 Prise en compte des collisions

Au cours du processus d'absorption d'un photon par l'électron, les vibrations du réseau et les collisions entre électrons jouent un rôle dissipatif, qui modifie l'état de l'électron afin qu'il ne puisse pas réémettre ce photon absorbé. Pour tenir compte de cet effet dissipatif, une méthode consiste à introduire un temps de relaxation τ qui indiquera que l'établissement de l'interaction s'effectue très lentement, de manière adiabatique. Il suffit alors de remplacer ω par $1 + i\omega/\tau$ dans $\hat{\mathcal{H}}_{Abs}$ et l'expression (6.8) devient :

$$\hat{\mathcal{H}}_{Abs} = \frac{e\hbar}{m\omega} \mathcal{E}_0 e^{-i\left(\omega + \frac{i}{\tau}\right)t} \vec{u}_e \cdot \vec{\nabla}$$

L'effet des interactions avec les autres particules sur l'Hamiltonien d'absorption est alors totalement contenu dans cette fréquence moyenne de collision. Nous allons désormais nous attacher à donner une expression exploitable afin d'être facilement insérée dans le calcul de la conductivité optique.

6.3.1 Règle d'or de Fermi

Le taux de transition d'une particule d'un état initial $|\vec{k}\rangle$ vers un état $|\vec{k}'\rangle$ dû à l'Hamiltonien d'interaction $\hat{\mathcal{H}}_{Int}$ est donné au second ordre de la théorie des perturbations par la règle d'or de Fermi. La probabilité pour que le système ait subi une transition au temps t est donné par l'amplitude de transition écrite en représentation interaction :

$$\langle \vec{k}' | \psi_{\vec{k}(t)} \rangle = \exp \left[-\frac{i}{\hbar} \left(\mathcal{E}(\vec{k}') \right) t \right] \langle \vec{k}' | \tilde{\psi}_{\vec{k}(t)} \rangle$$

Au premier ordre des perturbations², l'amplitude de transition s'écrit :

$$\langle \vec{k}' | \tilde{\psi}_{\vec{k}(t)} \rangle = -\frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t dt' \exp \left[\frac{i}{\hbar} \left(\mathcal{E}(\vec{k}') - \mathcal{E}(\vec{k}) - i\eta \right) t' \right] \langle \vec{k}' | \hat{\mathcal{H}}_{Int} | \vec{k} \rangle$$

Le taux de transition est donné par par la dérivée temporelle de la probabilité de transition soit :

$$P(k \rightarrow k', t) = \frac{1}{\hbar^2} \frac{\partial}{\partial t} \left| \int_{-\infty}^t dt' \exp \left[\frac{i}{\hbar} \left(\mathcal{E}(\vec{k}') - \mathcal{E}(\vec{k}) - i\eta \right) t' \right] \langle \vec{k}' | \hat{\mathcal{H}}_{Int} | \vec{k} \rangle \right|^2$$

où $\mathcal{E}(k)$ et $\mathcal{E}(k')$ sont les énergies des états non perturbés (sans interaction) initial et final. Le facteur η correspond au branchement adiabatique de l'interaction à $t' \rightarrow -\infty$, si nous le faisons

²Ceci stipule que si l'état initial de la fonction d'onde est un état propre du Hamiltonien non perturbé, alors son évolution temporelle causée par l'interaction s'écrira à l'aide d'une combinaison des autres états de la fonction d'onde.

$$|\psi_{\vec{k}(t)}\rangle = |\vec{k}\rangle - \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t dt' \hat{\mathcal{H}}_{Int}(t') |\vec{k}\rangle + \dots$$

tendre arbitrairement vers 0, nous obtenons la règle d'or de Fermi :

$$\lim_{\eta \rightarrow 0} P(k \rightarrow \vec{k}') = \frac{2\pi}{\hbar} \langle \vec{k}' | \hat{\mathcal{H}}_{Int} | \vec{k} \rangle^2 \delta(\mathcal{E}(\vec{k}') - \mathcal{E}(\vec{k})) \quad (6.13)$$

Cette expression représente la probabilité de transition par unité de temps d'un état initial vers un état final en conservant parfaitement l'énergie. La présence du delta de Dirac dans l'expression (6.13) souligne la nécessité d'introduire une distribution d'états finaux.

6.3.2 Règle de Matthiessen

Nous souhaitons calculer les propriétés de transport d'un solide au sein duquel différents processus de diffusion prennent place sur des échelles de temps similaires. Dans le cas précis qui nous intéresse, les électrons sont diffusés à la fois par les phonons et par les autres électrons. En première approximation, la résistivité électrique peut être calculée en sommant les résistivités induites par chacune des deux contributions. En effet, la résistivité étant proportionnelle à la probabilité de transition, nous pouvons supposer que les probabilités de transition s'ajoutent. Dans ce cas, il est dit que la *règle de Matthiessen* est vérifiée et se traduit par l'égalité suivante [10] :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{\tau_{e-e}} + \frac{1}{\tau_{e-ph}} \quad (6.14)$$

En réalité, cette égalité correspond à un cas particulier et la validité générale de la règle de Matthiessen est mise en doute lorsqu'on étudie plus précisément l'effet des collisions sur l'équation de transport. Dans le cadre de l'équation de Boltzmann avec collisions que nous avons définie en (2.1), la solution générale de l'équation avec les deux types de collisions n'est généralement pas la somme des solutions relatives à chacune des collisions calculées séparément. Ainsi, l'hypothèse selon laquelle le taux de diffusion dû à un mécanisme est indépendant des autres mécanismes concurrents s'effondre en dehors de l'approximation du temps de relaxation. Le taux réel de collisions électroniques dépend fortement de la configuration des autres électrons. Si la fonction de distribution électronique pris séparément lors de chaque processus était la même, alors l'influence d'un mécanisme sur un autre serait négligeable. L'approximation du temps de relaxation conduit peut être à une erreur grave et nous pouvons simplement retenir que l'inégalité sur la somme des résistivités, $\rho \geq \rho_{e-e} + \rho_{e-ph}$, est vérifiée.

Dans la suite, nous allons utiliser ce type d'approximation, ce qui nous amènera sans doute à surestimer la conductivité dans nos simulations en négligeant les interférences entre collisions. Nous allons, dans la prochaine section, développer séparément les expressions de chacune des deux contributions au transport électronique.

6.4 Influence du chauffage électronique sur la fréquence de collisions

6.4.1 Potentiel de Thomas-Fermi

Le phénomène d'écrantage dans les métaux provient de l'influence électrostatique mutuelle du gaz d'électrons sur le réseau d'ions. Les ions attirant les électrons, ils créent un surplus de charges négatives dans leur voisinage, réduisant ainsi leur champ attractif. Le comportement de l'écrantage d'un gaz d'électrons peut être décrit à partir de l'évaluation de la densité de charges induites ou par une fonction diélectrique ϵ . On utilise fréquemment une théorie d'électrons libres comme celle de Thomas-Fermi pour détailler l'écrantage dû à un potentiel périodique.

Si l'on note φ le potentiel d'écrantage associé à la diminution du champ, l'énergie du gaz de fermions devient $\mathcal{E} = \frac{1}{2}m_e v^2 - e\varphi$. La fonction de distribution s'écrit donc :

$$f(\mathcal{E}, \mu, \phi) = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{\mathcal{E} - \mu - e\varphi}{k_B T_e}\right)}$$

La densité initiale d'électrons $N_e(\mu)$ devient $N_e(\mu + e\varphi)$. Si nous considérons φ faible devant \mathcal{E} et μ , alors en traitant la quantité $e\varphi$ comme une petite variation du potentiel chimique, la densité induite de charges est donnée par [77] :

$$\rho_{e^-}^{ind} = -e[N_e(\mu + e\varphi) - N_e(\mu)] \simeq -e^2 \frac{\partial N_e}{\partial \mu} \varphi$$

En introduisant la fonction réponse χ définie par $\rho_{e^-}^{ind}(\vec{q}) = \chi(\vec{q})\varphi(\vec{q})$, on a $\chi(\vec{q}) = -e^2 \frac{\partial N_e}{\partial \mu}$, indépendant du vecteur d'onde \vec{q} . Enfin, la fonction diélectrique de Thomas-Fermi s'écrit :

$$\epsilon_{TF}(\vec{q}) = 1 + \frac{q_{TF}^2}{q^2} \quad (6.15)$$

où \vec{k}_{TF} est le vecteur d'onde de Thomas-Fermi définie par $q_{TF}^2 = \frac{e^2}{\epsilon_0} \frac{\partial N_e}{\partial \mu}$.

Afin de rendre compte de la probabilité de transition, nous introduisons le Hamiltonien d'interaction ($e-e$) reflétant l'écrantage du potentiel coulombien :

$$\hat{\mathcal{H}}_{Int} = \frac{e^2}{\epsilon_0 \epsilon_{TF}} \int_{\vec{k}} \frac{\exp[i\vec{k}(\vec{r}_1 - \vec{r}_2)]}{k^2 + q_{TF}^2} d\vec{k} \quad (6.16)$$

Ce modèle d'écrantage est basé sur le fait qu'à l'équilibre thermique et diffusif, le potentiel chimique μ est constant. Pour le maintenir constant, il faut augmenter la concentration en électrons dans les régions où l'énergie potentielle ($-e\varphi$) est basse, et la diminuer dans les régions où elle est élevée. Rappelons que l'approximation de Thomas-Fermi est valable tant que les potentiels électrostatiques varient lentement par rapport à la longueur d'onde d'un électron.

Nous définissons enfin l'énergie de Thomas-Fermi, quantité mieux adaptée dans le calcul des fréquences de collisions ($e-e$) que q_{TF} :

$$\mathcal{E}_{TF} = \frac{\hbar^2 q_{TF}^2}{2m_e} = \frac{e^2}{2\pi\epsilon_{TF}} \left(\frac{3N_e}{\pi} \right)^{1/3} \quad (6.17)$$

Nous venons d'établir les expressions des quantités relatives à l'écrantage dans le métal. Nous verrons par la suite qu'elles nous seront utiles pour la formulation des fréquences de collisions.

6.4.2 Les collisions électron-électron

Les électrons de conduction du métal sont soumis à des collisions à l'intérieur même de chaque bande. Il s'agit d'un processus d'autorelaxation, l'énergie totale du système électronique est ainsi conservée et seule leur distribution énergétique $f(\mathcal{E})$ évolue au cours du temps. Les transitions intervenant dans ces collisions intrabandes sont du type :

$$e_{\mathcal{E}} + e_{\mathcal{E}_1} \rightarrow e_{\mathcal{E}_2} + e_{\mathcal{E}_3} \quad (6.18)$$

L'énergie échangée au cours d'une telle collision peut être égale à l'énergie initiale de l'électron incident. En effet, en raison du fort écrantage des électrons dans un métal, les collisions sont du type « sphères dures ». Ces transitions doivent évidemment vérifier les lois de conservation de l'énergie et de l'impulsion totale :

$$\begin{cases} \vec{k} + \vec{k}_1 = \vec{k}_2 + \vec{k}_3 \\ \mathcal{E} + \mathcal{E}_1 = \mathcal{E}_2 + \mathcal{E}_3 \end{cases}$$

Afin de nous soustraire de la dépendance angulaire de l'impulsion, nous introduisons la conservation de l'impulsion dans sa configuration énergétique :

$$\begin{cases} \mathcal{E}_{min} = \max \left[(\sqrt{\mathcal{E}_1} - \sqrt{\mathcal{E}_3})^2, (\sqrt{\mathcal{E}} - \sqrt{\mathcal{E}_2})^2 \right] \\ \mathcal{E}_{max} = \min \left[(\sqrt{\mathcal{E}_1} + \sqrt{\mathcal{E}_3})^2, (\sqrt{\mathcal{E}} + \sqrt{\mathcal{E}_2})^2 \right] \end{cases}$$

La fréquence de collisions ($e-e$) s'évalue alors suivant les éléments de matrice du Hamiltonien à deux corps en insérant $k = \sqrt{\frac{2m_e}{\hbar^2}} \mathcal{E}^{1/2}$ et $dk = \frac{\mathcal{E}^{-1/2} d\mathcal{E}}{\sqrt{2m_e \hbar^2}}$ dans l'expression (6.16)

$$\hat{\mathcal{H}}_{Int} = \frac{e^2}{\epsilon_0 \epsilon_{TF}} \int_{\vec{k}} \frac{\exp[i\vec{k}(\vec{r}_1 - \vec{r}_2)]}{k^2 + q_{TF}^2} d\vec{k}. \quad [32, 112] :$$

$$\frac{1}{\tau_{e-e}(\mathcal{E})} \propto \langle e, e_1 | \mathcal{H}_{Int}^2 | e_3, e_4 \rangle = \frac{K_{ee}}{\sqrt{\mathcal{E}} \mathcal{E}_{TF}} \int \int_{\mathcal{E}_1, \mathcal{E}_2} \Phi(\mathcal{E}_1, \mathcal{E}_2, \mathcal{E}_3) d\mathcal{E}_1 d\mathcal{E}_2 \int_{\mathcal{E}_{min}}^{\mathcal{E}_{max}} \frac{1}{\sqrt{\mathcal{E}'(\mathcal{E}' + \mathcal{E}_{TF})^2}} d\mathcal{E}'$$

où $K_{ee} = \frac{m_e e^4}{4h^3(\epsilon_0 \epsilon_{TF})^2}$ et où la fonction $\Phi(\mathcal{E}_1, \mathcal{E}_2, \mathcal{E}_3)$ représente le domaine énergétique autorisé par le principe de Pauli relatif à un électron d'énergie \mathcal{E} :

$$\Phi(\mathcal{E}_1, \mathcal{E}_2, \mathcal{E}_3) = f(\mathcal{E}_1)[1 - f(\mathcal{E}_2)][1 - f(\mathcal{E}_3)]$$

En posant $x = \mathcal{E}/\mathcal{E}_{TF}$, $x_{min} = \mathcal{E}_{min}/\mathcal{E}_{TF}$ et $x_{max} = \mathcal{E}_{max}/\mathcal{E}_{TF}$, l'intégration sur les énergies accessibles s'écrit :

$$\int_{x_{min}}^{x_{max}} \frac{dx}{\sqrt{x}(1+x)^2} = \left[\arctan(\sqrt{x}) + \frac{\sqrt{x}}{1+x} \right]_{x_{min}}^{x_{max}}$$

Nous en déduisons alors l'expression de la fréquence de collisions pour une énergie \mathcal{E} donnée :

$$\frac{1}{\tau_{e-e}(\mathcal{E})} = \frac{K_{e-e}}{\mathcal{E}_{TF}^{3/2} \sqrt{\mathcal{E}}} \int_0^{2\mathcal{E}_F} d\mathcal{E}_1 \int_{\mathcal{E}_{min}}^{\mathcal{E}_{max}} \left[\frac{\sqrt{x}}{1+x} + \arctan(\sqrt{x}) \right]_{x_{min}}^{x_{max}} f(\mathcal{E}_1)[1 - f(\mathcal{E}_2)][1 - f(\mathcal{E}_3)] d\mathcal{E}_2$$

En considérant uniquement les diffusions impliquant des électrons quittant l'état d'énergie \mathcal{E} , nous obtenons l'expression classique de la durée de vie électronique au voisinage de la surface de Fermi :

$$\frac{1}{\tau_{e-e}(\mathcal{E})} = \frac{K_{e-e}}{2\mathcal{E}_{TF}^{3/2} \sqrt{\mathcal{E}_F}} \left[\frac{2\sqrt{\mathcal{E}_F \mathcal{E}_{TF}}}{4\mathcal{E}_F + \mathcal{E}_{TF}} + \arctan \sqrt{\frac{4\mathcal{E}_F}{\mathcal{E}_{TF}}} \right] \quad (6.19)$$

Nous avons alors supposé que les électrons étaient distribués suivant une statistique de Fermi-Dirac. Cette hypothèse nous permet d'obtenir la valeur moyenne de la fréquence de collisions à une température électronique T_e donnée, couplant ainsi le modèle cinétique au modèle fluide que nous avons utilisé jusque là. Néanmoins, la température électronique utilisée est tronquée puisqu'il faudrait en toute exactitude la remplacer par une température électronique effective. Sous cette approximation, la valeur moyenne de $\frac{1}{\tau_{e-e}}$ est obtenue en sommant sur les probabilités d'occupation des électrons à l'énergie \mathcal{E} [56] :

$$\left\langle \frac{1}{\tau_{e-e}} \right\rangle = \frac{1}{\mathcal{N}} \int_0^\infty \frac{f(\mathcal{E})[1 - f(\mathcal{E})]}{\tau_{e-e}(\mathcal{E})} d\mathcal{E} \simeq \frac{1}{\mathcal{N}} \int_0^{2\mathcal{E}_F} \frac{f(\mathcal{E})[1 - f(\mathcal{E})]}{\tau_{e-e}(\mathcal{E})} d\mathcal{E} \quad (6.20)$$

Où \mathcal{N} est un terme de normalisation. Nous avons considéré pour effectuer nos calculs que la fonction de Fermi était pratiquement nulle en $\mathcal{E} = 2\mathcal{E}_F$, ce qui est toujours vérifié dans le cas des températures électroniques étudiées. De plus, nous pouvons remarquer que le terme de normalisation se déduit simplement de la température :

$$\mathcal{N} = \int_0^\infty f(\mathcal{E})[1 - f(\mathcal{E})] d\mathcal{E} = k_B T_e \int_0^\infty \frac{\partial f(\mathcal{E})}{\partial \mathcal{E}} d\mathcal{E} = -k_B T_e f(0) \quad (6.21)$$

6.4.3 Les collisions électron-phonon

La prise en compte du taux de collisions électron-phonon est a priori plus complexe que celle des collisions ($e-e$). En effet, le premier n'impliquait qu'une seule sorte de particule, alors qu'ici, il faut étudier l'évolution de deux populations distinctes. La valeur de cette fréquence de collisions doit dépendre des deux paramètres de températures. Les interactions sont de la forme vue au cours du *chapitre 2* (§ 2.2.3) :

$$e_{\mathcal{E}} + ph_u \rightarrow e_{\mathcal{E}+u} \quad \text{et} \quad e_{\mathcal{E}} \rightarrow e_{\mathcal{E}-u} + ph_u \quad (6.22)$$

Les processus d'émission et d'absorption d'un phonon par un électron peuvent être assimilés à une collision ($e-ph$). En effet, ainsi que nous pouvons le voir sur les figures (2.6) à (2.9), la probabilité de collision associée au processus d'absorption est rigoureusement identique à celle du processus d'émission. A l'énergie électronique \mathcal{E} , il existe une fréquence de collisions ($e-ph$) obtenue en sommant sur toutes les énergies de phonons possibles. L'expression de cette fréquence s'apparente donc à celle de l'opérateur de Boltzmann $\frac{\partial f(\mathcal{E})}{\partial t}$ et donc à l'expression. Le terme de transition $\Phi(f, N_u)$ constitué par la somme des deux contributions possibles et relatif à une population d'électrons distribuée suivant $f(\mathcal{E})$ s'écrit :

$$\Phi(f, N_u) = [1 - f(\mathcal{E} - u)](1 + N_u) \mathcal{H}(\mathcal{E} - u) + [1 - f(\mathcal{E} + u)]N_u$$

où \mathcal{H} est la distribution de Heaviside. On en déduit l'expression de la fréquence de collision $\nu_{e-ph} = \frac{1}{\tau_{e-ph}}$ en sommant uniquement sur les énergies de phonons dont le vecteur d'onde se situe dans la 1^{ère} zone de Brillouin :

$$\frac{1}{\tau_{e-ph}(\mathcal{E})} = K_{e-ph} \int_0^{u_D} \frac{u^2}{\sqrt{(\mathcal{E})}} \left\{ [1 - f(\mathcal{E} - u)](1 + N_u) \mathcal{H}(\mathcal{E} - u) + [1 - f(\mathcal{E} + u)]N_u \right\} du$$

où $K_{e-ph} = \left(\frac{2\hbar^2}{m_e} \right)^{3/2} \frac{\pi^2 \mathcal{C}^T (\hbar c_S)^3}{k_B u_D^4}$, avec \mathcal{C}^T constante, c_S désignant la vitesse du son dans le métal, u_D l'énergie des phonons au bord de la zone de Brillouin [56].

La présence de \mathcal{H} s'explique par le fait que l'énergie des électrons subissant une interaction doit rester positive. Nous sommes ainsi assurés que l'opérateur de collisions équivalent $\frac{\partial f(\mathcal{E})}{\partial t}$ conserve le nombre d'électrons. De même que pour le taux de collisions ($e-e$), le taux de collision ($e-ph$) doit être moyenné sur tout le domaine d'énergie électronique pour ramener la température électronique comme seul paramètre comme dans l'expression (6.20).

Il apparaît que ce type de collisions est négligeable devant les collisions ($e-e$) pour des fortes températures électroniques. Par contre, elles jouent un rôle important dans le calcul des grandeurs optiques et thermiques proches de l'équilibre, lorsque T_e et T_i diffèrent peu. Nous avons donc privilégié l'utilisation de constantes calibrées sur les résultats à l'équilibre, en supposant une dépendance linéaire en T_i [83, 160]. Nous avons déjà utilisé cette approximation

au cours du *chapitre 2* pour la dépendance en température ionique de la conductivité thermique. Dans la suite, nous verrons que nous serons amenés à introduire une expression similaire dans le cas des transitions interbandes.

Dans ce chapitre, nous avons développé les éléments théoriques nécessaires à cette seconde partie. Les expressions relatives à la description statique et dynamique de notre système ont été introduits. Nous avons très brièvement rappelé les caractéristiques de la théorie des bandes dans un solide grâce à la formulation des électrons de Bloch. Ensuite, nous nous sommes intéressés au cas de l'absorption d'une onde électromagnétique et nous avons abouti à l'expression de Kubo-Greenwood pour la conductivité électrique. Les processus de transport au sein du réseau cristallin ont alors été explicités dans le cadre de la théorie des liquides de Fermi. Nous allons maintenant utiliser ces notions dans le prochain chapitre pour exposer notre modèle d'absorption optique lors de la transition solide-plasma.

Modélisation des propriétés optiques

Dans le premier chapitre de ce travail, nous avons exprimé l'énergie laser absorbée comme une portion de l'énergie incidente. Elle était déterminée en fonction des indices optiques ou des conductivités de chacune des cellules du maillage du code DELPOR. Les propriétés optiques variaient alors en fonction de la température du réseau T_i et de la densité du système. Nous allons à présent proposer une dépendance de la conductivité en fonction de la température électronique T_e au moyen de fréquences de collisions.

Sur la base des définitions et des hypothèses que nous avons établies dans le chapitre précédent, nous allons combiner le modèle classique des électrons libres au modèle en bandes de Bloch afin de nous munir d'expressions explicites pour le calcul de la conductivité dans le matériau. Cette modélisation présente l'avantage de découpler les différentes contributions et d'être ainsi plus facilement insérable dans un code d'interaction laser-matière.

Dans la première section, nous différencierons les différents régimes de fréquence de collisions en fonction de la température électronique. Nous supposerons que l'absorption d'énergie électromagnétique par les électrons se décompose en termes de contributions intrabande et interbande. Chacune de ces deux contributions fera l'objet d'une attention particulière dans les deux sections suivantes. L'absorption interbande sera étudiée à travers le cas particulier de l'aluminium. Nous appliquerons ensuite ce modèle à l'interprétation de l'influence de la longueur d'onde sur le coefficient d'absorption dans le cas d'une expérience spécifique [43].

7.1 Fréquence de collisions électron-électron

Dans cette première section, nous allons voir de quelle manière le chauffage du gaz électronique affecte la valeur de la fréquence de collisions ($e-e$). Nous allons discuter de la validité du comportement de cette fréquence de collisions dans les régimes solide et plasma afin d'aboutir à un comportement de ν_{ee} sur une large gamme de température et de densité. La contribution électronique à la fréquence de collisions totale n'est justifiée que lorsque le matériau se trouve en phase solide. En effet, lorsque le métal est porté à une température ionique supérieure à la température de fusion, le cristal perd ses propriétés ordonnées et la notion de bandes d'énergie n'a plus de sens. Nous supposons alors que la validité de notre modèle s'arrête puisqu'aucune raison physique ne nous permet de considérer l'influence des seules collisions entre électrons sur la conductivité électrique. En effet, la présence d'un ordre à longue distance est indispensable pour modifier la quantité de mouvement lors d'une collision ($e-e$). Pour des températures supérieures à la température de fusion, les propriétés optiques sont ainsi supposées être indépendantes de la température électronique. Elles varient en fonction de la température ionique, de la densité et du taux d'ionisation de manière identique à celles tabulées à l'équilibre thermodynamique fournies par Ebeling *et al* [34], et utilisées dans les simulations pour les durées d'impulsions plus longues [15].

7.1.1 Collisions électroniques dans le réseau cristallin

A l'équilibre thermique, le taux de collision est supposé provenir essentiellement des collisions électron-ion mais il est rapidement dominé par des collisions ($e-e$) lors du déséquilibre thermique. En fait, l'effet des collisions électroniques sur l'absorption optique est loin d'être évident. Ceci relève du fait que les collisions ($e-e$) ne conduisent pas nécessairement à l'apparition d'une résistance. Lorsqu'un flux d'électron s'établit, son ralentissement implique un changement dans le moment cinétique total des électrons. Mais, si le moment cinétique total est conservé lors des collisions ($e-e$), elles ne peuvent pas causer de ralentissement du flux électronique. Il en résulte que les collisions ($e-e$) classiques n'influencent pas sur la résistance ou la conductivité électrique. Dans le cadre de la description des électrons de Bloch que nous avons définie dans le chapitre précédent, nous devons rappeler que le quasimoment de l'électron n'est défini qu'à $\hbar\vec{\mathcal{K}}$ près, où $\vec{\mathcal{K}}$ est une période du réseau réciproque. L'effet des collisions ($e-e$) sur l'absorption ne joue un rôle que par l'intermédiaire de processus dits *Umklapp* autorisés par l'existence du réseau cristallin à structure périodique [1, 59]. Notons qu'il ne s'agit pas d'un processus du second ordre et l'amplitude de diffusion s'écrit de la même manière que vue dans le *chapitre 6*.

En raison du principe d'exclusion de Pauli, la majorité des électrons concernés par la transition sont ceux voisins de la surface de Fermi. Ainsi, plus la température électronique augmente, plus la fenêtre est large dans l'espace des phases disponible. Ce dernier doit néanmoins être restreint par la condition imposée par la conservation de la quantité de mouvement modulo $\vec{\mathcal{K}}$. Cette restriction dépend en principe de la forme de la surface de Fermi, dont les distorsions

induites par les variations de température et de densité sont difficilement exprimables. Nous nous limiterons donc à découpler la formulation de la fréquence de collision totale et le taux de processus Umklapp [89]. Comme nous l'avons vu au cours de la première partie [*chapitre 2*], la fréquence de collisions affiche une dépendance proche de T_e^2 . Néanmoins, lors de la collision entre les deux électrons, l'interaction coulombienne répulsive est écrantée à longue distance comme nous l'avons développée au chapitre précédent. Pour calculer la fréquence de collisions intrabandes dans le solide, nous avons utilisé l'expression obtenue dans le cadre de la théorie des liquides de Fermi par Voisin *et al*, provenant de l'expression (6.19) obtenue au *chapitre 6* [155] :

$$\nu_{ee}^{Solide} = \frac{\Delta \mathcal{C}}{\mathcal{N}} \left[\frac{2\sqrt{\mathcal{E}_{TF}\mathcal{E}_F}}{4\mathcal{E}_{TF} + \mathcal{E}_F} + \arctan \sqrt{\frac{4\mathcal{E}_F}{\mathcal{E}_T}} \right] \int_0^\infty d\mathcal{E} (\mathcal{E} - \mathcal{E}_F)^2 f(\mathcal{E}, T_e) [1 - f(\mathcal{E}, T_e)] \quad (7.1)$$

où le facteur de normalisation s'écrit $\mathcal{N} = -k_B T_e f(0)$ et où \mathcal{C} s'exprime en fonction de l'énergie de Thomas-Fermi $\mathcal{E}_{TF} = \frac{\hbar^2 q_{TF}^2}{2m}$ avec q_{TF} vecteur d'onde de Thomas-Fermi (§ 6.4.1), et en fonction de ϵ_d , représentant la contribution des électrons de la bande d à la fonction diélectrique statique du métal :

$$\mathcal{C} = \frac{m_e^\dagger e^4}{64\pi^3 \hbar^3 \epsilon_0^2 \epsilon_d^2 \mathcal{E}_{TF}^{3/2} \mathcal{E}_F^{1/2}} \quad \text{et} \quad q_{TF} = \frac{e}{\pi \hbar} \sqrt{\frac{m_e^\dagger}{\epsilon_0 \epsilon_d} (3\pi^2 N_e)^{1/6}} \quad (7.2)$$

Cette expression représente la fréquence d'interaction à deux corps par l'intermédiaire d'un potentiel coulombien écranté par les autres électrons de conduction ainsi que par les électrons de la bande d présente dans les métaux nobles. Néanmoins, pour nous limiter aux seuls processus Umklapp, nous devons connaître la proportion de ces processus par rapport à l'ensemble des interactions ($e-e$). Le pourcentage Δ de processus Umklapp a fait l'objet d'une étude spécifique par Lawrence et Wilkins [89, 90]. Ces auteurs ont paramétré les valeurs de Δ en fonction des surfaces de Fermi dans le cas particulier de bandes parallèles. Dans le tableau (7.1), nous avons répertorié les données nécessaires à l'utilisation de l'expression de la fréquence de collisions précédente.

Paramètre Matériau/Unité	N_e m^{-3}	m_e^\dagger/m_e s.u.	ϵ_d s.u.	Δ s.u.
Or	5.9×10^{28}	1.14	6.7	0.35
Cuivre	8.45×10^{28}	1.24	5.6	0.3
Aluminium	18.1×10^{28}	1.3	1	0.32

TAB. 7.1 – Valeurs numériques des paramètres utilisés dans le calcul de la fréquence de collisions ($e-e$) au sein du solide pour les trois matériaux les plus utilisés dans nos simulations. Les corrections de masse optique proviennent de la référence [113]. Les valeurs de Δ sont tirées des références [55] et [89].

Sur la figure (7.1) est représentée la dépendance en température électronique ν_{ee}^{Solide} pour différentes densités d'électrons. Nous retrouvons la dépendance à laquelle nous nous attendions en T_e^2 . Elle est néanmoins plus ou moins modulée par l'effet d'écran dû aux autres électrons. Celui-ci s'exprime par ailleurs en augmentant la fréquence de collisions alors que la densité diminue, ce qui peut paraître contradictoire. Ce phénomène se comprend néanmoins assez bien puisque plus N_e baisse, plus la probabilité pour que deux électrons donnés interagissent augmente en raison de la diminution de l'écrantage. Ainsi les collisions dites « distantes » sont plus fréquentes que les collisions dites « proches » [166].

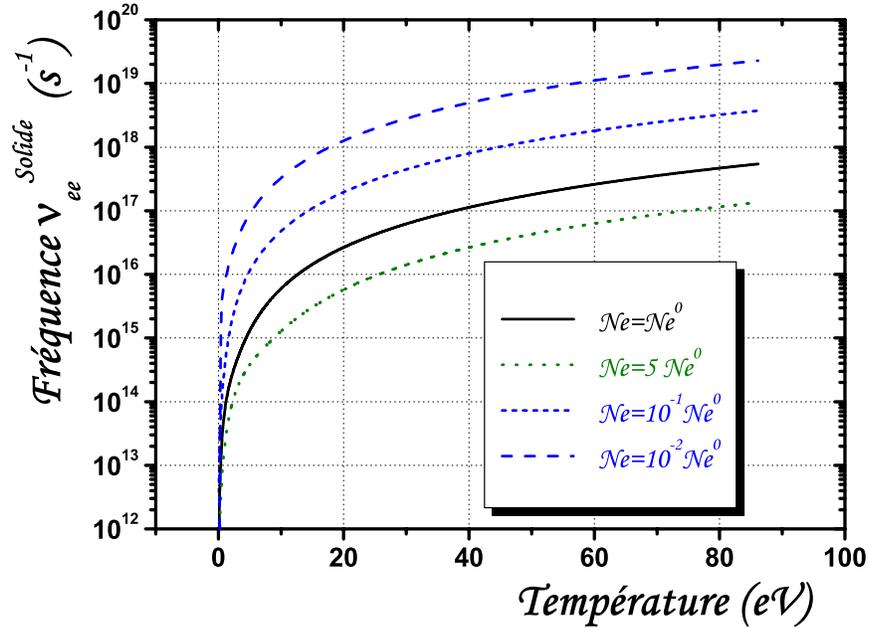


FIG. 7.1 – Evolution de la fréquence de collision électronique en fonction de la température électronique pour différentes gammes de densités.

Nous n'avons pas limité la validité des approximations effectuées pour obtenir l'expression de ν_{ee}^{Solide} . Si nous avons tenu compte de l'augmentation de l'énergie thermique des électrons, nous n'avons pas considéré la variation de l'énergie potentielle coulombienne entre particules. Ainsi, lorsque le gaz d'électrons ne peut plus être uniquement décrit comme un gaz de fermions dégénérés, à haute température et basse densité, nous devons pouvoir reproduire les propriétés connues, relatives à l'état plasma.

7.1.2 Collisions électroniques dans un plasma

Pour le gaz d'électrons d'une température largement supérieure à T_F , nous devons retrouver la dépendance d'un plasma ionisé de Lorentz donnée par Spitzer et Härm en $T_e^{-3/2}$ [139]. Nous pouvons calculer sa dépendance plus explicitement grâce à la formulation donnée par Lee et More [91]. Ils ont fourni une expression de la section efficace coulombienne en fonction des

paramètres d'impact minimum b_{min} et maximum b_{max} . La fréquence de collision électronique s'écrit :

$$\nu_{ee}^{Plasma} = \frac{2\pi}{3} \sqrt{\frac{2}{m_e}} \left(\frac{Z^* e^2}{4\pi\epsilon_0} \right)^2 \frac{N_e \ln(\Lambda)}{(k_B T_e)^{3/2}} \left\{ \left[1 + \exp\left(-\frac{\mu}{k_B T_e}\right) \right] \int_0^\infty \frac{\mathcal{E}^{1/2} d\mathcal{E}}{1 + \exp(-\mu/k_B T_e)} \right\}^{-1} \quad (7.3)$$

avec Z^* degré moyen d'ionisation. Le logarithme coulombien $\ln(\Lambda)$ est le point central de la séparation des régimes, il est défini par $\Lambda = [1 + (b_{max}/b_{min})^2]^{1/2}$. b_{max} est supposé être égal à la longueur de Debye-Hückel λ_{DH} , et b_{min} égal à la demi-longueur de De-Broglie λ_{DB} . Ils s'écrivent :

$$\begin{cases} b_{max} = \lambda_{DH} = \frac{(k_B T_e / m_e)^{1/2}}{\omega_p} = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T_e}{N_e e^2}} \\ b_{min} = \frac{\lambda_{DB}}{2} = \frac{\hbar}{(m_e k_B T_e)^{1/2}} \text{ ou } b_{min} = \frac{Z^* e^2}{k_B T_e} \end{cases} \quad (7.4)$$

Nous pouvons noter qu'à la limite complètement dégénérée, $T_e \rightarrow 0$ et $\mu/k_B T_e \rightarrow -\infty$, l'expression se réduit alors à celle utilisée par Eidmann *et al* [37].

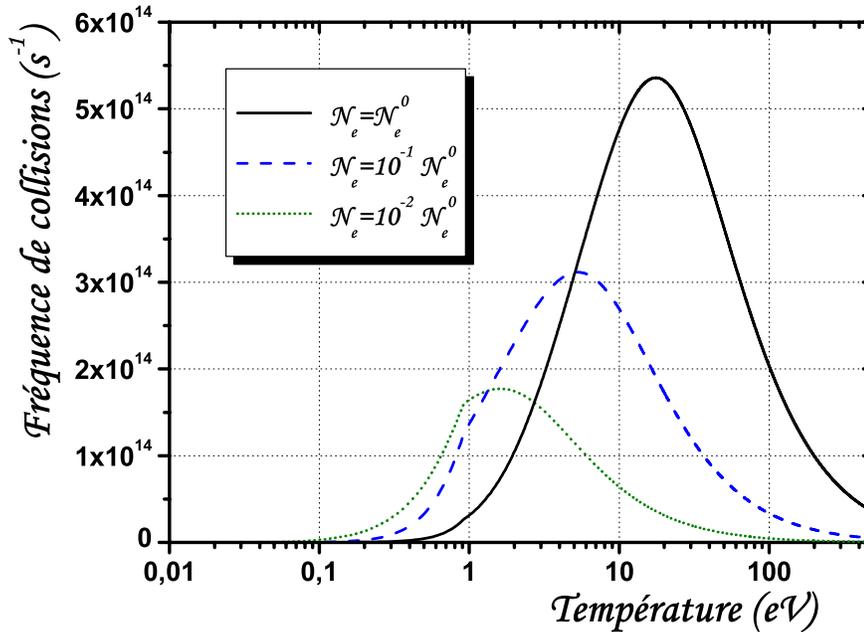


FIG. 7.2 – Dépendance en température électronique de la fréquence de collisions formulée par le modèle de Lee et More et reproduisant les propriétés plasmas de spitzer pour différentes densités.

Sur la figure (7.2), nous avons représenté ν_{ee}^{Plasma} en fonction de la température électronique. Nous pouvons remarquer qu'à la densité solide, ν_{ee}^{Plasma} commence à décroître et à suivre le régime de Spitzer en $T_e^{-3/2}$ pour des températures électroniques très importantes, supérieures à

18 eV à densité solide. De plus, Lee et More imposent au logarithme coulombien d'être supérieur à 2, ce qui n'est vérifié que pour des températures électroniques supérieures à 120 eV à densité solide et à environ 12 eV à un centième de la densité solide. L'expression précédente n'est donc censée être applicable que pour des faibles densités (de l'ordre de $10^{-3}N_e^0$) et pour des températures typiquement supérieures à la température de Fermi.

Nous sommes donc ici au cœur du problème de la modélisation des processus de transports au cours de la transition entre la matière solide au plasma dense. Il n'existe pas de modèle parfaitement approprié et seuls les comportements limites sont connus. Aucune donnée expérimentale fiable n'est également disponible et nous allons devoir effectuer une interpolation entre ces deux domaines. Néanmoins, la décroissance de Spitzer apparaissant trop tardivement, nous avons préféré utiliser la relation simple au dessus de l'énergie de Fermi, présentant le comportement désiré en $T_e^{-3/2}$ [43] :

$$\nu_{ee}^{Plasma} = \frac{E_F}{\hbar} \left(\frac{k_B T_e}{E_F} \right)^{-3/2} \quad (7.5)$$

où la dépendance en densité est contenue dans l'expression de l'énergie de Fermi.

7.1.3 Interpolation entre les deux régimes

Comme nous venons de le voir, un seul modèle n'est pas suffisant pour décrire la dépendance en température électronique de ν_{ee} . Si le modèle solide permet de rendre compte de la dépendance en T_e^2 pour des faibles températures, il diverge rapidement au-dessus de T_F . A l'inverse, le modèle plasma n'est valable qu'à partir d'une énergie électronique égale à quelques énergies de Fermi. Nous avons donc décidé d'effectuer une interpolation entre ces deux régimes.

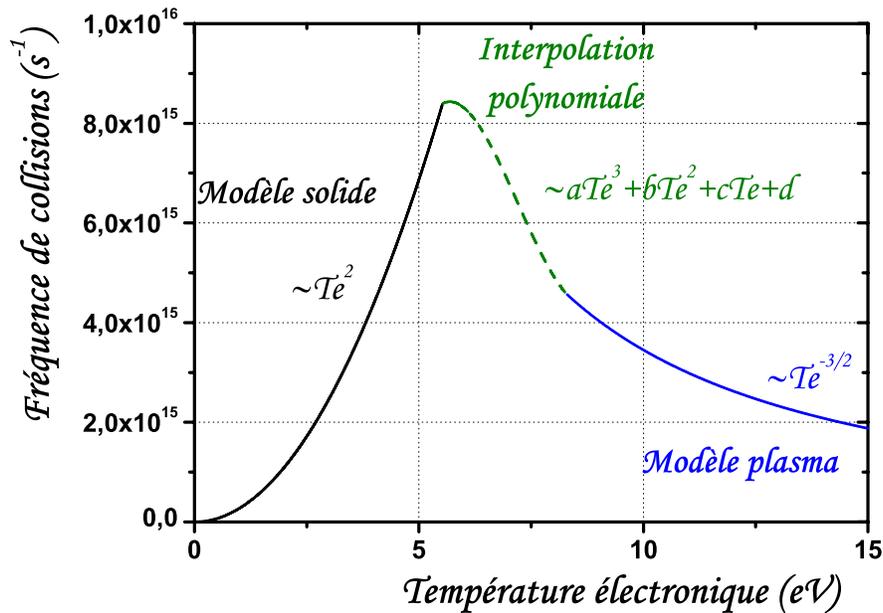


FIG. 7.3 – Interpolation de la fréquence de collisions entre le modèle solide et le modèle plasma.

Afin de s'assurer de la continuité de la dérivée de ν_{ee} lors du raccordement des deux régimes, nous avons utilisé un polynôme du troisième degré pour réaliser l'interpolation. Au cours de la simulation, nous sommes donc amenés à chercher les valeurs de a, b, c, d telles que $\nu_{ee}^{Int} = aT_e^3 + bT_e^2 + cT_e + d$ prolonge correctement le modèle solide et le modèle plasma.

Sur la figure (7.3), nous avons juxtaposé les résultats des modèles solide et plasma à notre interpolation. Il est clair que le maximum obtenu dépend directement de la zone dans laquelle nous désirons effectuer l'interpolation, en conséquence de quoi, il ne peut pas être vu comme un résultat du calcul. Sa position est tout à fait arbitraire et pourrait servir de paramètre libre pour des ajustements ultérieurs. Nous pouvons montrer que les variables a, b, c, d s'expriment en fonction de $T_{e_n}^{(S)} = T_F$, limite de la jonction Solide-Interpolation et $T_{e_{n+1}}^{(P)} = 3/2T_F$ à la jonction Intepolation-Plasma selon le système de type spline suivant :

$$\left\{ \begin{array}{l} a = \frac{[\nu_{ee}^{(P)}]^{n+2} - 3[\nu_{ee}^{(P)}]^{n+1} + 3[\nu_{ee}^{(S)}]^n - [\nu_{ee}^{(S)}]^{n-1}}{2(\Delta T_e)^3} \\ b = \frac{[\nu_{ee}^{(P)}]^{n+1} - 2[\nu_{ee}^{(S)}]^n + [\nu_{ee}^{(S)}]^{n-1}}{2(\Delta T_e)^3(T_{e_n} + 2T_{e_{n+1}})} - \frac{[\nu_{ee}^{(P)}]^{n+2} - 2[\nu_{ee}^{(P)}]^{n+1} + [\nu_{ee}^{(S)}]^n}{2(\Delta T_e)^3(2T_{e_n} + T_{e_{n+1}})} \\ c = \frac{[\nu_{ee}^{(P)}]^{n+1} - [\nu_{ee}^{(S)}]^{n-1}}{2\Delta T_e - 3aT_{e_n}^2 - 2bT_{e_n}} \\ d = [\nu_{ee}^{(S)}]^n - aT_{e_n}^3 - bT_{e_n}^2 - cT_{e_n} \end{array} \right. \quad (7.6)$$

Nous disposons donc à présent d'une dépendance de la fréquence de collision électronique pour des températures électroniques allant de 0.1 eV à quelques dizaines d'eV. Celle-ci assure la continuité entre les différents régimes asymptotiques connus et est directement exploitable pour la modélisation des propriétés optiques macroscopiques dépendant explicitement des fréquences de collisions.

7.2 Absorption optique intrabande

Dans les premiers instants de l'interaction, les électrons de conduction absorbent l'énergie incidente en oscillant dans le champ électromagnétique. Ce mouvement d'ensemble se superpose aux mouvements, d'origine thermique pour les plasmas, ou quantique pour les métaux. La fonction de distribution électronique évolue sous l'action du champ électrique appliqué, de la forme prévue par l'équation de Boltzmann. Cette dernière prévoit l'établissement d'un courant électrique, proportionnel à la conductivité électrique. Dans les réseaux cristallins, et pour des longueurs d'onde allant jusqu'à l'infra-rouge lointain, l'absorption par les électrons libres est dominée par les transitions nommées intrabandes [113]. Cette contribution intrabande peut être décrite de manière phénoménologique par l'intermédiaire du modèle de Drude qui se révèle être bien adapté pour décrire le comportement de ces électrons quasi-libres lorsque le vecteur d'onde associé au photon est supposé nul. A cette limite de grande longueur d'onde, l'électron ne distingue plus l'excitation électromagnétique longitudinale de celle transverse et l'absorption des photons est alors régie par la fréquence plasmon.

Dans le modèle de Drude, le métal est assimilé à un réseau ionique baigné dans un nuage d'électrons libres. Lorsque celui est soumis à une onde plane monochromatique, une polarisation électrique induite apparaît. Dans l'approximation dipolaire, cette dernière se limite à la contribution des moments dipolaires $\vec{\mathcal{P}}$ que nous supposons dépendre linéairement du champ électrique. L'ensemble du nuage électronique répond de manière collective à la sollicitation extérieure, ce qui nous permet de relier le vecteur déplacement électrique $\vec{\mathcal{D}}$ au champ $\vec{\mathcal{E}}$ incident par l'intermédiaire de la fonction diélectrique complexe $\tilde{\epsilon}$:

$$\vec{\mathcal{D}} = \epsilon_0 \vec{\mathcal{E}} + \vec{\mathcal{P}} = \epsilon_0 \tilde{\epsilon} \vec{\mathcal{E}}$$

La fonction diélectrique est une quantité complexe que nous avons déjà introduite au *chapitre 1* dans l'expression de l'équation de Helmholtz. Elle est relative à la conductivité électrique $\tilde{\sigma}$, déterminant ainsi les propriétés optiques sous la forme :

$$\tilde{\epsilon}(\omega) = 1 + \frac{i\tilde{\sigma}(\omega)}{\omega\epsilon_0}$$

Les électrons de conduction étant délocalisés dans un métal, ils ne sont pas soumis à un champ local, qui correspondrait à la somme du champ électrique appliqué et des champs dipolaires induits par les autres charges, mais à un champ moyenné sur le volume d'une maille élémentaire du cristal. Sous l'hypothèse de monochromaticité, le champ moyen noté $\vec{\mathcal{E}}(\vec{r}) \exp(-i\omega_0 t)$ agit sur un électron libre de charge e et de masse effective m^\dagger . En notant \vec{u} le déplacement de l'électron autour de sa position d'équilibre moyenne \vec{r} , l'équation du mouvement s'écrit alors :

$$\frac{d^2 \vec{u}}{dt^2} + \nu \frac{d\vec{u}}{dt} = -\frac{e}{m^\dagger} \vec{\mathcal{E}}(\vec{r}) \exp(-i\omega_0 t) \quad (7.7)$$

où ν est un terme d'amortissement visqueux, associé aux collisions subies par l'électron au cours de son déplacement. Il contient l'ensemble des contributions collisionnelles occasionnant un changement de l'impulsion totale du gaz électronique. En ce sens, seules les collisions umklapp doivent être considérées dans l'expression des collisions ($e-e$), et nous utiliserons l'expression de la fréquence de collision ($e-e$) développée dans la section précédente. Les collisions ($e-ph$) sont également prises en compte en phase solide dans le cas d'un faible déséquilibre ainsi que les collisions ($e-i$) dominantes pour des températures ioniques supérieures à la fusion. La polarisation induite au point \vec{r} est donnée par $\vec{\mathcal{P}} = -N_e e \vec{u}$ et la solution de l'équation (7.7) nous permet de déterminer l'expression de la permittivité électrique de Drude $\tilde{\epsilon}_D$:

$$\tilde{\epsilon}_D = 1 - \frac{N_e e^2}{m_e^\dagger} \frac{1}{\epsilon_0 \omega_0 (\omega_0 + i\nu)}$$

De manière équivalente, la conductivité électrique se déduit de la vitesse de déplacement de l'électron :

$$\tilde{\sigma}_D = \frac{N_e e^2}{m_e^\dagger} \frac{\tau}{1 - i\omega_0 \tau}$$

La conductivité électrique est ainsi exprimée en fonction du taux de collision $\tau = 1/\nu$, appelé également temps de relaxation. Si ce modèle est simple d'utilisation, il n'en demeure pas moins qu'il doit reproduire le plus fidèlement possible la réponse du système électronique. Comme nous venons de le voir, elle est contenue dans l'expression du temps de relaxation qui reflète les processus collisionnels susceptibles de modifier la vitesse de l'électron.

Nous allons à présent étudier l'effet de la structure en bandes des électrons d'un métal. Cette structure autorise des processus d'absorption interbande, qui jouent un rôle important dans l'absorption optique de la plupart des métaux. Elles sont notamment responsables de la couleur rougeâtre du cuivre et de l'or en raison de l'absorption dans le bleu à 2.2 et 2.4 eV. Dans ce cas précis, il s'agit d'absorption interbande dans les métaux nobles due à la présence de la sous-couche ou bande d occupée partiellement. Les transitions sont ainsi possibles entre les états de la bande d occupés et la surface de Fermi des électrons de conduction. Nous n'allons pas étudier les caractéristiques de ce type de transition ici, mais elles ont fait l'objet de diverses études dédiées aux métaux nobles [13, 56, 146]. Nous ne nous intéresserons qu'à ce type de transitions dans l'aluminium puisque ce métal présente un fort comportement interbande à la longueur d'onde des lasers les plus fréquemment utilisés dans notre étude, à 800 nm. De plus, il s'agit d'un métal très souvent étudié expérimentalement et ayant fait l'objet de modélisations adaptées. Tout d'abord, nous allons détailler les processus interbandes de manière simple puis nous l'appliquerons au cas de l'aluminium à travers le modèle de Ashcroft et Sturm [9].

7.3 Cas de l'aluminium

Dans la plupart des métaux polyvalents, de fortes transitions interbandes apparaissent dans le spectre des électrons de conduction du matériau cristallin. Ceci est la conséquence de bandes de conduction, dites parallèles, occupées et inoccupées qui sont effectivement parallèles sur des régions substantielles de l'espace des vecteurs d'onde \vec{k} à proximité des plans parallèles aux faces d'un polyèdre. Les transitions autorisées entre ces bandes conduisent à de l'absorption interbande dominante à des énergies approximativement deux fois égales à la composante de Fourier du potentiel effectif cristallin U_k correspondant à la face en question.

Dans le cas de l'aluminium, l'absorption entre la plupart des bandes parallèles apparaît au voisinage des surfaces parallèles aux faces hexagonales (111) et cubiques (200). Les intervalles entre les niveaux d'énergie correspondant sont $2U_{111} = 0.487$ eV et $2U_{200} = 1.53$ eV [7]. Nous utiliserons ces valeurs dans le cadre du modèle à deux bandes de Ashcroft et Sturm que nous exposerons dans le prochain paragraphe [9]. La seconde absorption interbande à 1.53 eV se caractérise par une chute de la réflectance dans les échantillons cristallins et par un petit pic dans le coefficient d'extinction. Ehrenreich *et al* furent les premiers à identifier cette transition entre bandes parallèles [38]. L'absorption à environ 0.5 eV est beaucoup moins prononcée, cachée par l'absorption intrabande de type Drude. Enfin, Smith et Segall ont répertorié les diverses grandeurs ajustant le modèle sur des données expérimentales [136].

Parmi les diverses études sur le sujet, nous devons souligner les travaux de Mathewson et Myers qui ont étudié le déplacement de l'absorption interbande vers des plus hautes énergies quand la température est abaissée [99]. Ils ont détaillé cette dépendance en température pour la transition autour de 1.5 eV. Leurs travaux ont permis de montrer que la fréquence interbande était décalée lorsque la température ionique dans le milieu. Il est également important de préciser ici que ce modèle a été introduit dans le code DELPOR dans la limite où le matériau conserve ses propriétés cristallines. Ainsi, pour des températures supérieures à la température de fusion, le matériau perd subitement les propriétés optiques imputables à sa structure, responsables des transitions interbandes [101].

7.3.1 Contribution interbande entre bandes parallèles

Les transitions interbandes que nous allons considérer ici apparaissent entre les bandes d'électrons de Bloch. Pour que l'énergie de l'électron change de $\hbar\omega$, typiquement quelques eV, l'électron doit se déplacer d'une bande à une autre sans variation appréciable du vecteur d'onde. De tels processus constituent les transitions interbandes. Elles peuvent survenir lorsque $\hbar\omega$ dépasse $\mathcal{E}_{n_2} - \mathcal{E}_{n_1}$, où \mathcal{E}_{n_1} est au-dessous du niveau de Fermi \mathcal{E}_F (pour qu'un électron soit disponible pour cette excitation) et \mathcal{E}_{n_2} est au-dessus de \mathcal{E}_F pour que l'état final soit inoccupé d'après le principe de Pauli. Cette énergie $\hbar\omega$ seuil, appelée seuil interbande, est due soit à l'excitation de la bande de conduction vers d'autres niveaux inoccupés, soit à l'excitation d'électrons de bandes remplies vers des niveaux inoccupés de la bande de conduction.

La figure (7.4) représente des bandes d'énergie dans un calcul d'électrons presque libres tracé le long de la droite ΓX , perpendiculaire au plan de la feuille, passant par le centre de la face carrée dans un réseau cubique face centré. Les bandes sont tracées en fonction du vecteur d'onde \vec{k} décomposé en une composante parallèle (k_{\parallel}) et une composante perpendiculaire (k_{\perp}). Ces deux bandes sont séparées d'une quantité d'énergie constante égale à $2|U|$, indépendante de \vec{k} . En raison de la position du niveau de Fermi, il existe un intervalle de valeurs de \vec{k} à l'intérieur de la face carrée pour lesquelles des transitions de niveaux occupés vers des niveaux inoccupés sont possibles, tous différant d'une valeur égale à $2|U|$ [10]. Sur notre schéma, les bandes tracées en trait plein dans le plan $(\mathcal{E}_k, k_{\parallel})$ sont reportées dans la 1^{ère} zone de Brillouin. Le décalage d'un vecteur d'onde \vec{K} peut ainsi être complètement ignoré, ce qui implique que le vecteur d'onde d'un électron de Bloch est défini à $\pm\vec{K}$ près. Lorsque l'énergie $\hbar\omega$ d'un photon incident excède la distance énergétique $2|U_{200}|$ séparant les deux bandes, les électrons situés dans un intervalle de largeur $\hbar\omega$ autour de l'énergie de Fermi \mathcal{E}_F peuvent être excités de la bande inférieure vers la bande supérieure. Une absorption résonante est alors associée à la condition $\hbar\omega = 2|U|$.

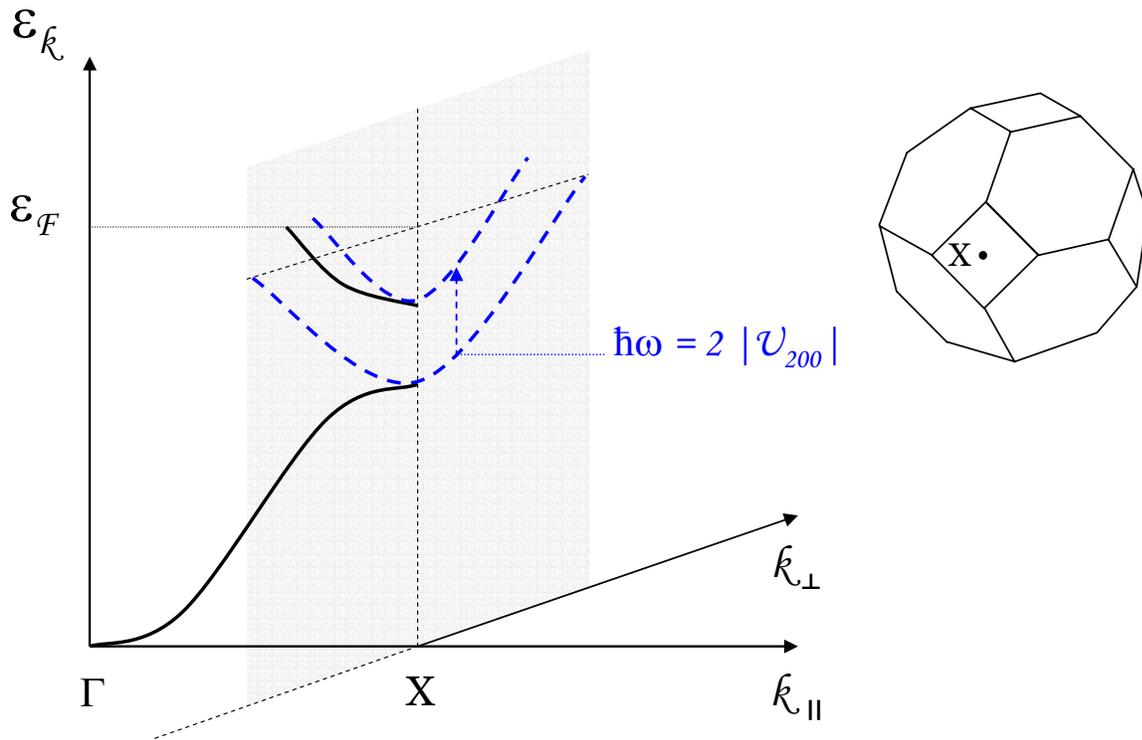


FIG. 7.4 – Schéma descriptif du processus d'absorption optique interbande le long de ΓX et dans la face carrée perpendiculaire à ΓX (plan coloré). Les bandes sont presque parallèles et séparées d'une quantité égale à $2|U_{200}|$ [10].

Cette structure de bandes suppose que les électrons sont indépendants et qu'ils ne subissent pas de collisions. Pour corriger ce défaut, un temps phénoménologique de relaxation est introduit dans le modèle d'absorption, pouvant alors présenter un maximum décentré par rapport à $\hbar\omega = 2|U_{200}|$ et une largeur d'absorption plus ou moins marquée. L'effet de ces collisions est introduit et discuté dans la suite de ce chapitre. Nous avons alors supposé que n'importe quel mécanisme provoquant un transfert de vecteur d'onde contribuait à affecter ce type de transitions interbandes. Si l'effet des collisions électron-phonon a été montré depuis longtemps [99], celui des collisions électron-électron n'est pas encore parfaitement formalisé. Nous avons néanmoins supposé que les interactions ($e-e$) et ($e-ph$) perturbaient ces transitions à travers une fréquence de collisions totale.

Nous allons à présent déterminer les effets des processus précédents sur l'évolution de l'absorption optique. Nous nous sommes limités à considérer des bandes paraboliques parallèles qui modélisent assez bien le cas de certains métaux polyvalents comme l'aluminium [38]. Nous allons nous contenter de donner des résultats pour ce matériau pour lequel nous disposons de modèles théoriques appropriés ainsi que de nombreuses données expérimentales. Nous allons présenter le modèle développé par Ashcroft et Sturm qui permet de décrire l'évolution de la dépendance des propriétés optiques avec la température du matériau et la longueur d'onde d'irradiation. Ce modèle présente l'avantage d'éviter le caractère phénoménologique de la plupart des autres modèles tout en s'exprimant de manière simple et analytique. Ce modèle a été appliqué par Gámez et Ocaña pour effectuer des simulations de l'interaction laser-matière [51]. Il a également servi à interpréter les expériences de Fisher *et al* que nous détaillerons à la fin de ce chapitre [43].

7.3.2 Le modèle de Ashcroft et Sturm

Afin de tenir compte des transitions interbandes dans le domaine du proche infra-rouge et du visible, un calcul de la conductivité électrique a été effectué dans l'aluminium. De par la complexité des processus mis en jeu, un modèle simplifié s'appliquant uniquement dans le cas des métaux polyvalents a été proposé par Ashcroft et Sturm [9]. C'est la forme analytique élégante du modèle permettant un ajustement des paramètres proche de ceux relatifs au modèle de Drude qui nous a incité à l'utiliser. La conductivité interbande σ_{IB} est donnée d'après (6.11) par :

$$\begin{aligned} \sigma_{IB}(\omega) &= \frac{e^2\pi}{3i\omega m^2\Omega} \sum_k \left(\frac{\hbar\omega}{\mathcal{E}_2^k - \mathcal{E}_1^k} \right)^2 \left| \langle \psi_2^k | \nabla | \psi_1^k \rangle \right|^2 f(\mathcal{E}_1^k) \\ &\times \left[\frac{1}{\mathcal{E}_2^k - \mathcal{E}_1^k - \hbar(\omega + i/\tau)} + \frac{1}{\mathcal{E}_2^k - \mathcal{E}_1^k + \hbar(\omega + i/\tau)} \right] \end{aligned} \quad (7.8)$$

L'absorption entre deux bandes parallèles est responsable du processus interbande pour des fréquences inférieures à $\hbar\omega_0 \simeq \hbar\mathcal{K}^2/2m[(2k_F/\mathcal{K}) - 1]$ où k_F est le vecteur d'onde de Fermi, ensuite elle est dominée par l'absorption entre deux bandes normales¹. En définissant les variables adimensionnées $z = \hbar\omega/2|U_K|$, $z_0 = \hbar\omega_0/2|U_K|$, $t_0 = (z_0^2 - 1)^{1/2}$ et $b = \hbar/(2\tau|U_K|)$, le calcul analytique de la conductivité complexe interbande parallèle se réduit à :

$$\begin{aligned} \Re[\sigma_{\parallel}(\omega)] &= \sigma_a(a_0K) \frac{(\omega\tau)^2}{1 + (\omega\tau)^2} \left| \frac{2U_K}{\hbar\omega} \right|^2 \frac{J_1 + J_2}{\pi} \\ &\times \left\{ \left[1 - \left(\frac{2U_K}{\hbar\omega} \right)^2 - \left(\frac{1}{\omega\tau} \right)^2 \right]^2 + \frac{4}{(\omega\tau)^2} \right\}^{-1/4} \end{aligned} \quad (7.9)$$

$$\begin{aligned} \Im[\sigma_{\parallel}(\omega)] &= \frac{\sigma_a(a_0K)}{2b\pi\rho} \left\{ \frac{1}{2} \sin\phi_+ \ln \left(\frac{t_0^2 + 2t_0\rho \cos\phi_+ + \rho^2}{t_0^2 - 2t_0\rho \cos\phi_+ + \rho^2} \right) \right. \\ &+ \sin\phi_+ \left[\text{atan} \left(\frac{t_0 + \rho \sin\phi_+}{\rho \sin\phi_+} \right) + \text{atan} \left(\frac{t_0 - \rho \cos\phi_+}{\rho \sin\phi_+} \right) \right] \\ &\left. + \frac{b^2 - z^2}{b^2 + z^2} (J_1 + J_3) \right\} \end{aligned} \quad (7.10)$$

où a_0 est le rayon de Bohr et $\vec{\mathcal{K}}$ est un vecteur du réseau réciproque et où l'on a posé :

$$\sigma_a = e^2/(24\pi a_0 \hbar), \quad \rho = [(1 + b^2 - z^2)^2 + 4z^2 b^2]^{1/4} \text{ et l'angle } \phi_{\pm} = \frac{1}{2} \left[\frac{\pi}{2} \pm \text{atan} \left(\frac{1 + b^2 - z^2}{2bz} \right) \right].$$

Les fonctions J_1, J_2, J_3 dépendent de ω et ϕ_- et sont définies par :

¹On trouvera une explication en appendice de la publication de Ashcroft et Sturm. L'expression obtenue provient de la résolution de l'équation séculaire du système.

$$\begin{cases} J_1 = \frac{1}{2} \left(\frac{z^2 - b^2}{z^2 + b^2} \cos \phi_- + \frac{2zb}{z^2 + b^2} \sin \phi_- \right) \ln \left(\frac{t_0^2 + 2t_0\rho \sin \phi_- + \rho^2}{t_0^2 - 2t_0\rho \sin \phi_- + \rho^2} \right) + \frac{4zb\rho}{(z^2 + b^2)} \operatorname{atan} t_0 \\ J_2 = \left(\frac{z^2 - b^2}{z^2 + b^2} \sin \phi_- - \frac{2zb}{z^2 + b^2} \cos \phi_- \right) \left[\operatorname{atan} \left(\frac{t_0 + \rho \sin \phi_-}{\rho \cos \phi_-} \right) + \operatorname{atan} \left(\frac{t_0 - \rho \sin \phi_-}{\rho \cos \phi_-} \right) \right] \\ J_3 = \frac{z^2 - b^2}{z^2 + b^2} \left(\sin \phi_- - \frac{2zb}{z^2 + b^2} \cos \phi_- \right) \left[\operatorname{atan} \left(\frac{t_0 + \rho \sin \phi_-}{\rho \cos \phi_-} \right) + \operatorname{atan} \left(\frac{t_0 - \rho \sin \phi_-}{\rho \cos \phi_-} \right) \right] \end{cases}$$

Dans le cas des métaux polyvalents comme l'aluminium, la première zone de Brillouin est un polyèdre à 14 faces : 8 sont hexagonales et les indices de Miller associés sont [111] et 6 sont carrées et les indices de Miller sont [200]. Chacune des faces du polyèdre contribue à la conductivité qui se calcule alors comme la somme :

$$\sigma_{IB}(\hbar\omega) = \sum_{\mathcal{K}} \sigma_{\mathcal{K}}(\hbar\omega) = 8 \times \sigma_{\mathcal{K}}^{[111]}(\hbar\omega) + 6 \times \sigma_{\mathcal{K}}^{[200]}(\hbar\omega) \quad (7.11)$$

où les valeurs de \mathcal{K} sont $\mathcal{K}_{[111]} = 4\pi/a$ et $\mathcal{K}_{[200]} = 2\pi\sqrt{3}/a$ avec a paramètre de maille.

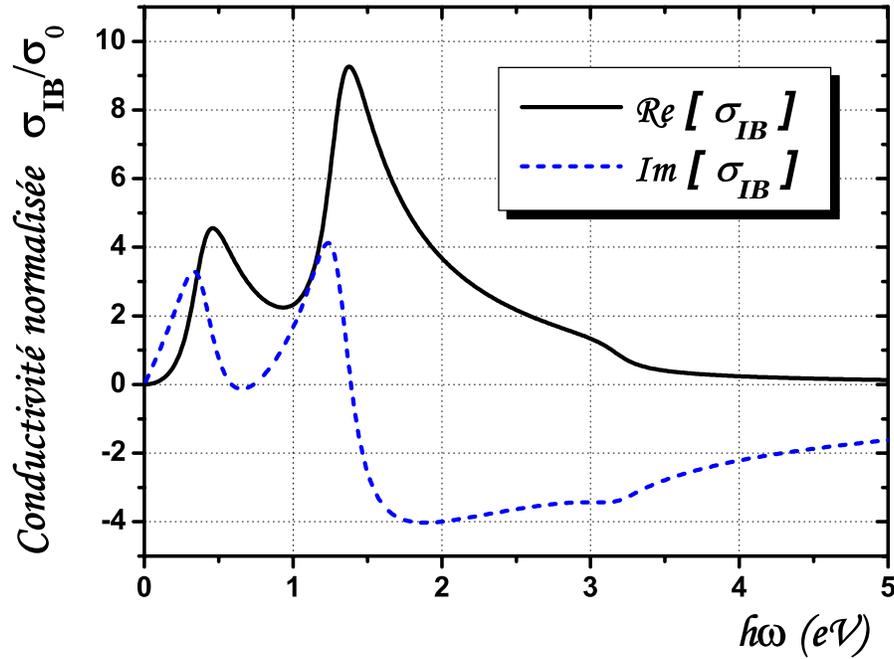


FIG. 7.5 – Dépendance spectrale de la conductivité interbande complexe dans les conditions standard à $T = 300K$ et $N_e = N_e^0$. La fréquence de collision a été fixée à $0.5 \times 10^{14} \text{ s}^{-1}$ [113]. Deux transitions interbandes apparaissent distinctement pour des photons incidents d'environ 1.5 eV et 0.5 eV.

Nous avons représenté sur la figure (7.5) la dépendance spectrale de la conductivité interbande. La transition interbande correspondant à une énergie de photon de 1.55 eV une conductivité deux fois plus importante que celle de la transition autour de 0.5 eV. Ensuite, sur la figure (7.6), nous avons dissocié la partie réelle et la partie réelle de la conductivité. Lorsque la fréquence de collisions augmente, $\Im m[\sigma_{IB}/\sigma_0]$ augmente de manière monotone. Par contre, nous remarquons que $\Re e[\sigma_{IB}/\sigma_0]$ est pratiquement constante aux plus faibles fréquences de collisions puis commence à chuter pour une fréquence de collisions typiquement égale à celle caractéristique du solide froid (entre $1 \times 10^{14} \text{ s}^{-1}$ [136] et $2 \times 10^{14} \text{ s}^{-1}$ [38]). Ceci est bien cohérent avec le fait que le taux de transitions interbandes à 1.55 eV diminue avec l'augmentation de déséquilibre dans le matériau. Ensuite, lorsque la fréquence de collisions augmente, le pic interbande est déplacé vers les photons de plus basses énergies. Nous en déduisons ainsi qu'à la longueur d'onde laser de 800 nm, ces transitions diminuent rapidement avec l'augmentation de température et nous verrons que la conductivité interbande sera très vite masquée par la composante de Drude.

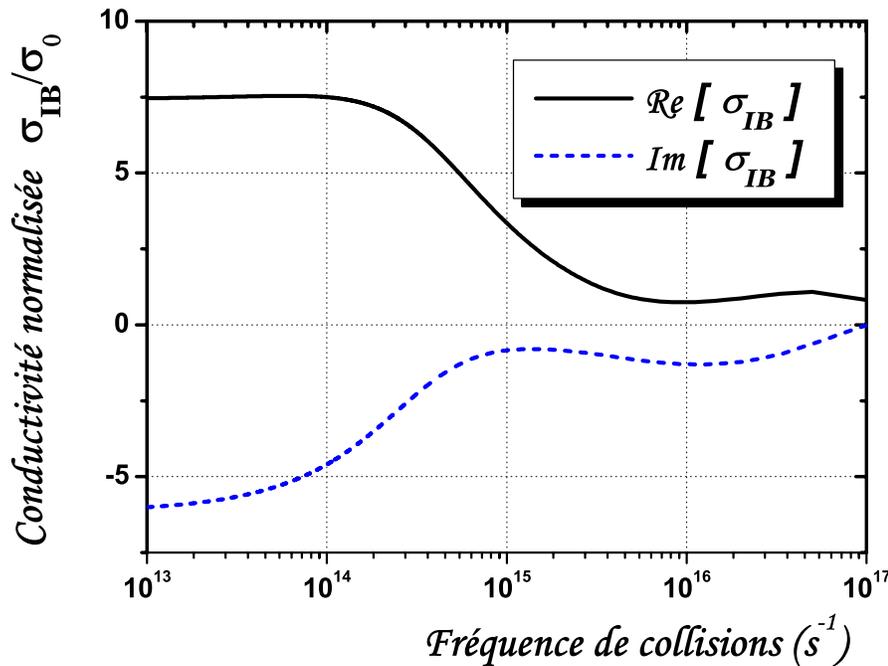


FIG. 7.6 – Conductivité interbande complexe en fonction de la fréquence de collision dans les conditions standard à $T = 300K$ et $N_e = N_e^0$ pour une longueur d'onde incidente de 800 nm.

Nous pouvons, à partir de la conductivité, obtenir la permittivité diélectrique du matériau grâce à l'équation (8.1) que nous définirons dans le prochain chapitre. La figure (7.7) donne la permittivité interbande à laquelle nous avons adjoint la permittivité intrabande prévue par le modèle de Drude. La permittivité diélectrique complexe totale est alors reportée ainsi que chacune des contributions intrabande et interbande.

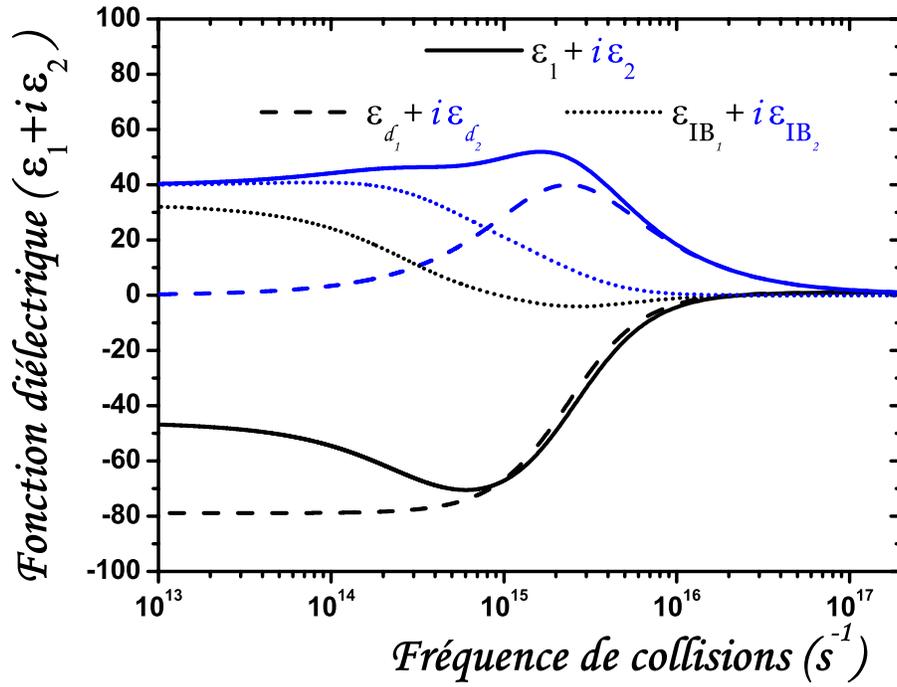


FIG. 7.7 – Contributions intrabande, indiquée (d) et interbande, indiquée (IB) à la fonction diélectrique complexe en fonction de la fréquence de collisions dans les conditions standard à $T_i = 300K$ et $N_e = N_e^0$ pour une longueur d'onde incidente de 800 nm.

La figure (7.8) représente la variation des indices optiques, réel et imaginaire, en fonction de la fréquence de collisions électroniques. Ces courbes ont été obtenues pour une onde incidente de 800 nm dans l'aluminium à l'état solide standard ($T_i = 300K$, $N_e = N_e^0$). La valeur expérimentale des indices à l'équilibre est également représentée [113]. L'augmentation de l'indice réel et imaginaire avec l'accroissement de la fréquence de collisions jusqu'à environ $\nu_{ee} = 10^{15} \text{ s}^{-1}$ ne peut s'expliquer que par la prise en compte de ces transitions interbandes à cette énergie dans le proche infra-rouge. Ensuite leur diminution est due à la contribution intrabande, et ils suivent le comportement classique du modèle de Drude.

A titre d'indication, nous avons représenté sur la même figure la variation de l'épaisseur de peau avec ν_{ee} . Elle est définie par :

$$\delta = \frac{\lambda}{4\pi\kappa} \quad (7.12)$$

Nous pouvons constater que l'épaisseur de peau est doublée pour une fréquence de collisions $\nu_{ee} \simeq 10^{16} \text{ s}^{-1}$. L'énergie incidente absorbée est donc répartie sur une profondeur deux fois plus importante à cette fréquence de collisions.

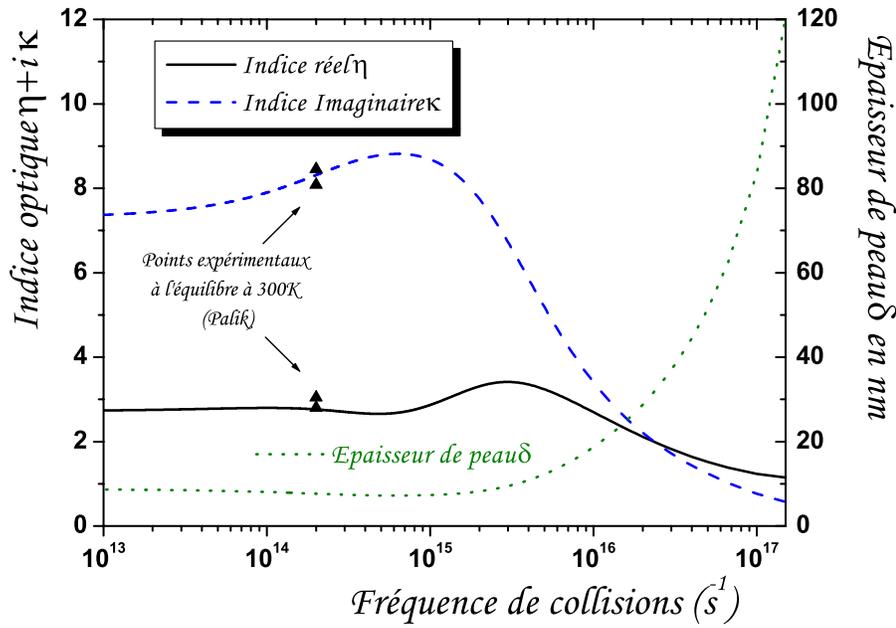


FIG. 7.8 – Dépendance des indices optiques en fréquence de collisions à $T_i = 300K$ dans l'aluminium pour des photons de 1.55 eV. L'évolution de l'épaisseur de peau est également représentée sur la figure.

Nous disposons donc d'un modèle permettant de gérer l'évolution des indices en fonction de la fréquence de collisions. En l'associant à la dépendance en température électronique que nous avons définie dans la première section de ce chapitre, nous avons accès à la dépendance des propriétés optiques macroscopiques en fonction des températures électronique et ionique. Nous avons ainsi dû ajouter une contribution due aux collisions ($e-ph$) prise sous la forme indiquée par Eidmann *et al* où nous avons ajusté la constante k_s pour reproduire les indices à 300K [37] :

$$\nu_{e-ph}^{(S)} = 2k_s \frac{e^2 k_B T_i}{4\pi\epsilon_0 \hbar^2 v_F} \quad (7.13)$$

où v_F est la vitesse de Fermi des électrons.

Afin d'illustrer et de valider le modèle d'absorption interbande précédent, nous allons comparer les résultats que nous obtenons en insérant ce modèle dans le code d'interaction DELPOR avec des expériences spécifiques. Ce sera l'occasion pour nous d'étayer l'effet des transitions interbandes et intrabandes sur l'efficacité de l'absorption optique.

7.4 Mise en évidence de l'effet des collisions interbandes sur l'absorption

Fisher *et al* ont étudié théoriquement et expérimentalement l'absorption d'un échantillon d'aluminium assujéti à une irradiation par impulsions de 50 fs [43]. Pour des intensités typiquement inférieures à 10^{15} W cm², il est apparu que l'absorption était dominée par les transitions interbandes à 800 nm. Dans ce paragraphe, nous allons présenter les résultats de nos simulations réalisées dans les mêmes conditions que les expériences à 800 nm et 400 nm. Leurs comparaisons aux données expérimentales publiées par ces auteurs nous permettront de mieux visualiser l'effet relatif des collisions interbandes et intrabandes.

Dans une première série de simulations, nous avons calculé la valeur du coefficient d'absorption total, intégré sur la durée de l'impulsion, correspondant au rapport de l'énergie absorbée sur l'énergie totale incidente. La variation d'intensité est effectuée en maintenant la durée d'impulsion égale à 50 fs et en augmentant la fluence laser de 5 mJ cm⁻² à 50 J cm⁻². Sur la figure (7.9), nous avons superposé les résultats expérimentaux et la courbe théorique publiés par les auteurs à nos résultats de simulation.

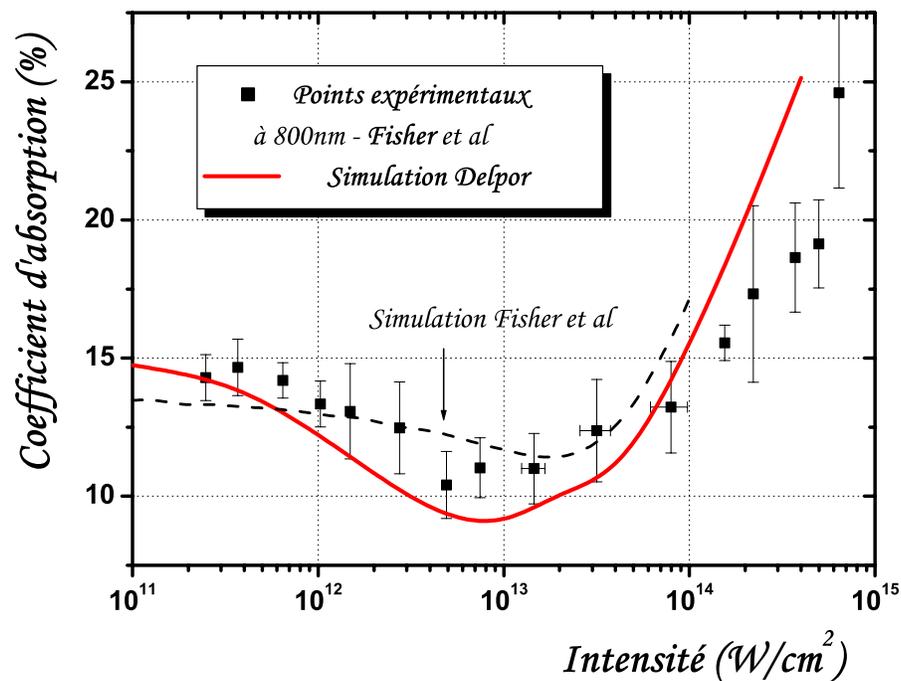


FIG. 7.9 – Evolution du coefficient d'absorption optique en fonction de l'intensité pour une impulsion incidente de 800 nm.

L'évolution de l'absorption est marquée par deux régimes distincts. Le premier se caractérise par une baisse du coefficient d'absorption alors que l'intensité augmente tandis que le second présente une hausse de ce paramètre optique. Dans nos simulations, la tendance s'inverse pour une intensité d'environ $8 \times 10^{12} \text{ W cm}^{-2}$. Il s'agit de l'intensité à partir de laquelle les collisions intrabandes dominent les contributions interbandes. En effet, pour l'aluminium dans le visible et le proche infra-rouge, l'absorption interbande est prépondérante à la température ambiante. A basse intensité, l'augmentation en température électronique produit une augmentation de la fréquence de collisions ($e-e$) qui augmente l'absorption intrabande. Toutefois, celle-ci n'est pas suffisante pour compenser la diminution de l'absorption interbande qui diminue avec l'augmentation de la fréquence de collision comme nous l'avons vu sur la figure (7.6). Par conséquent, il est important de pouvoir résoudre l'équation de Helmholtz qui permet de tenir compte de la variation des indices durant l'irradiation. Ceci est d'autant plus nécessaire aux plus hautes intensités où les indices varient très rapidement et très fortement.

Dans la section précédente, nous avons évoqué le fait que le pic d'absorption, centré autour de 800 nm lorsque le solide est à température ambiante, pouvait être décalé lors du chauffage du matériau. Ainsi, lorsque la température s'accroît, la fréquence de collisions augmente et le pic d'absorption interbande se décale du côté des photons de plus basses énergies tout en s'élargissant et diminuant en intensité. La contribution interbande de la conductivité augmente lorsque le pic se rapproche de l'énergie favorisant un maximum de transition. Ensuite, le pic de transition s'éloigne vers les plus hautes longueurs d'onde et s'étale. Un déplacement de seulement quelques dizaines de nm en longueur d'onde, par exemple décalé vers les courtes longueurs d'onde, peut alors produire un déplacement du minimum vers les fortes intensités. En augmentant encore la température, les contributions interbande et intrabande de la conductivité diminuent conjointement, et l'absorption des photons incidents s'accroît. De plus, notons que lorsque le régime d'absorption s'inverse, l'épaisseur de peau est minimale, comme nous l'avons vu au paragraphe précédent.

Enfin, nous pouvons préciser que lorsque T_e devient supérieure à T_F , l'augmentation de la population électronique dans la bande supérieure pourrait ne plus être négligeable. En effet, ceci pourrait conduire à des variations de l'absorption interbande dues au dépeuplement du niveau inférieur pour peupler le niveau supérieur. Néanmoins, plus T_e augmente, plus les collisions intrabandes dominent et nous pouvons légitimement supposer que l'absorption n'est en réalité pas sensiblement modifiée.

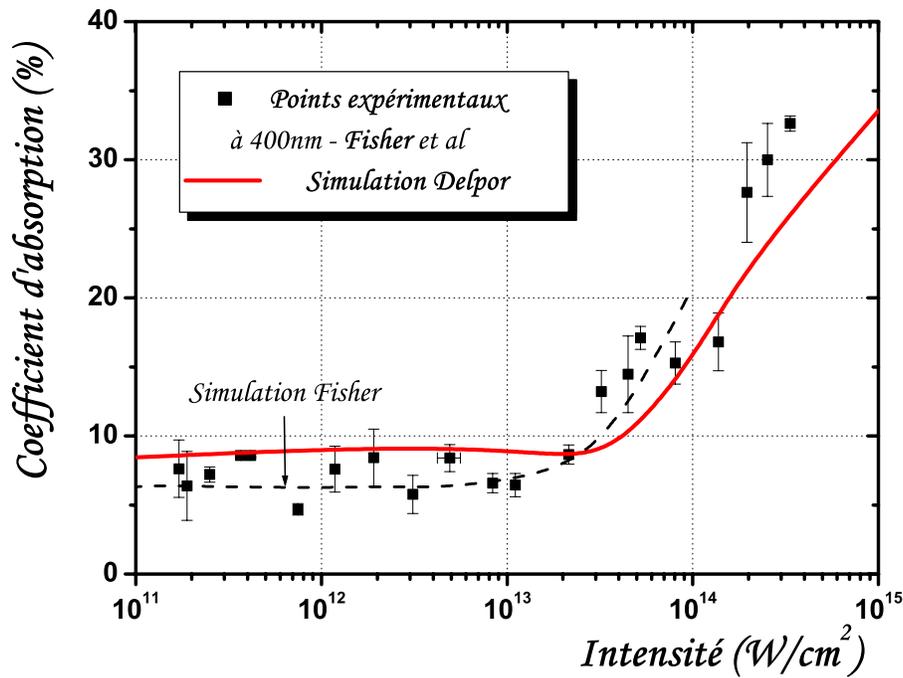


FIG. 7.10 – Evolution du coefficient d'absorption optique en fonction de l'intensité pour une impulsion incidente de 400 nm.

Pour nous assurer que cette diminution de l'absorption est bien due aux transitions interbandes à 800 nm, nous présentons sur la figure (7.10) la dépendance en intensité de l'absorption d'une impulsion de 400 nm. Outre la longueur d'onde, les conditions sont les mêmes que dans l'étude précédente et nous superposons encore nos simulations aux résultats expérimentaux publiés.

Nous pouvons voir que pour des intensités inférieures à $3 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$, l'absorption est constante, égale à celle du solide froid bien connue [113]. Ensuite, lorsque le métal s'échauffe en surface, le coefficient d'absorption augmente en raison de l'augmentation de la température électronique et de la fréquence de collision intrabande associée. Les propriétés optiques suivent alors le modèle de Drude et nous n'observons aucune diminution de l'absorption. Il n'y a en effet pas de transition interbande à 400 nm et la contribution des transitions interbandes est négligeable à cette longueur d'onde. Nos simulations reproduisent fidèlement les données expérimentales jusqu'à quelques dizaines de $J \text{ cm}^{-2}$ où les effets induits par la pré-impulsion entrent en jeu, en créant un pré-plasma en surface.

L'origine de la diminution de l'absorption alors que l'intensité augmente avait déjà été discutée par les auteurs ayant réalisé ces expériences spécifiques. Notre objectif n'était donc pas de réinterpréter leurs résultats mais de pouvoir valider notre modèle sur des expériences appropriées. La nette distinction que nous sommes parvenus à obtenir numériquement entre les deux longueurs d'onde montre bien la pertinence des modèles utilisés.

Dans ce chapitre, nous avons donné une image simple des différents mécanismes collisionnels susceptibles de régir l'absorption de l'impulsion laser. Ceci nous a conduit à différencier les processus intrabandes des processus interbandes dans le solide. Différents modèles ont ensuite été mis en œuvre dans le contexte du déséquilibre thermique engendré par les impulsions ultracourtes. Nous avons ainsi eu l'opportunité de relier les grandeurs macroscopiques optiques mesurables aux fréquences de collisions des particules dans le métal.

La dernière étude illustrant l'insertion des différents modèles dans le code de simulations nous a permis de distinguer les particularités des propriétés optiques dans l'aluminium induites par la longueur d'onde $\lambda = 800$ nm des autres longueurs d'onde. Nous en avons conclu que nos résultats numériques étaient très satisfaisants pour tenir compte du déséquilibre thermique et des différentes contributions dans un métal comme l'aluminium. En insérant ces différents modèles dans le code de simulation, nous avons pu étudier diverses expériences que nous allons présenter dans le prochain chapitre.

Application à l'interprétation de résultats expérimentaux

Grâce au modèle d'absorption optique développé dans le début de cette seconde partie, nous disposons d'une dépendance des propriétés optiques en fonction de la fréquence de collisions et donc en fonction du degré de déséquilibre atteint par le matériau. Dans un souci de validation des hypothèses effectuées et du modèle introduit dans la simulation, nous avons comparé nos résultats à un échantillon de données publiées dans ce domaine. Dans ce chapitre, nous allons nous placer dans des conditions similaires d'irradiation (longueur d'onde, intensité, polarisation, angle d'incidence, formes et durées d'impulsion) afin de reproduire au mieux les données expérimentales. Ces confrontations ont à la fois pour but de créditer nos suppositions, de fixer une limite à notre étude, et dans la mesure du possible, de donner une interprétation aux résultats obtenus.

En premier lieu, nous allons expliciter le calcul des grandeurs macroscopiques accessibles dans la majorité des travaux expérimentaux, en l'occurrence la réflectivité et la transmittivité. Dans un premier temps, nous étudierons leur évolution au moyen d'expériences dépourvues d'échantillonnage temporel. Ceci implique que chaque résultat est intégré sur la durée de l'impulsion incidente, au cours de laquelle de nombreuses quantités évoluent. Ainsi, chacun des résultats contient implicitement les variations des propriétés thermodynamiques et donc du matériau. Enfin, nous affinerons la compréhension du comportement des propriétés optiques à travers deux expériences récentes résolues en temps. Elles présentent l'avantage de découpler les rôles des processus thermiques, hydrodynamiques et collisionnels sur les indices optiques et donc de faciliter l'interprétation des mesures.

8.1 Réflectivité optique d'un métal

Jusqu'ici, nous avons décrit l'évolution de propriétés microscopiques qui ne sont mesurables qu'indirectement, après déconvolution des propriétés optiques macroscopiques. En pratique, l'état du système est évalué par des mesures de réflectivité ou de transmittivité. Dans le prochain paragraphe, nous allons présenter une estimation des dépendances de la réflectivité en fonction des fréquences de collisions afin de dégager les principaux régimes d'absorption. Ensuite, nous donnerons les relations entre ces valeurs instantanées calculées et les grandeurs mesurées expérimentalement.

8.1.1 Dépendances typiques de la réflectivité

Afin de discuter des différents régimes, nous devons donner l'expression des indices optiques en fonction des fréquences de collisions dans le milieu. D'après les équations de Maxwell, et en ignorant la polarisation due aux transitions interbandes, la relation de dispersion s'écrit :

$$\begin{aligned}\vec{k}^2 &= \frac{\omega^2}{c^2} + i\frac{\omega}{\epsilon_0 c^2}\sigma(\omega) = \frac{\omega^2}{c^2} + \frac{\omega_p^2}{c^2} \frac{i\omega\tau}{1 - i\omega\tau} \\ &= \epsilon(\omega) \frac{\omega^2}{c^2}\end{aligned}$$

où $\omega_p = (N_e e^2 / m_e \epsilon_0)^{1/2}$ est la pulsation plasma du système. L'indice optique $n(\omega)$, lié directement à la fonction diélectrique $\epsilon(\omega)$, s'écrit ainsi en fonction de la conductivité due aux charges libres :

$$n^2(\omega) = \epsilon(\omega) = 1 + \frac{i\sigma(\omega)}{\omega} = 1 + \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \frac{i\omega\tau}{1 - i\omega\tau} \quad (8.1)$$

Dans le cas d'un champ alternatif, les charges libres ne se déplacent pas arbitrairement loin et les charges liées ne restent pas au repos mais les deux types de charge oscillent avec la fréquence du champ. Si la fréquence est suffisamment basse ($\omega\tau \ll 1$), les vitesses de charges libres répondront en phase avec le champ, *i.e.* $\sigma(\omega)$ sera essentiellement réelle. Au contraire les vitesses des charges liées ne répondront pas en phase avec le champ, *i.e.* $\epsilon(\omega)$ sera, dans ce cas, essentiellement réelle. A des fréquences plus élevées, les charges libres peuvent répondre sans aucun rapport de phase et $\sigma(\omega)$ sera imaginaire pur dans le cas des fréquences optiques. A l'inverse, les charges liées peuvent répondre en phase, ou non, avec le champ électrique selon la fréquence et le matériau.

Pour simplifier la situation, nous nous plaçons dans un premier temps dans le cas d'une onde rencontrant à l'incidence normale une interface entre un milieu homogène d'indice $n(\omega)$ et l'air d'indice $n_{air} = 1$. La réflectivité prend alors la forme suivante :

$$\mathcal{R} = \left| \frac{n_{air} - n(\omega)}{n_{air} + n(\omega)} \right|^2 = \left| \frac{1 - n(\omega)}{1 + n(\omega)} \right|^2$$

En fonction de la fréquence de collisions dans le métal, nous pouvons distinguer trois régimes différents :

- Si $\omega\tau \ll 1 \ll \omega_p\tau$ alors nous pouvons estimer que $1 - i\omega\tau \simeq 1$ et ainsi :

$$n^2(\omega) = 1 + \frac{i\omega_p^2\tau}{\omega(1 - i\omega\tau)} \simeq \frac{i\omega_p^2\tau}{\omega}$$

Soit $n(\omega) \simeq (1 + i)\sqrt{\frac{\omega_p^2\tau}{2\omega}}$ et nous pouvons en déduire que $\mathcal{R} \simeq 1 - \frac{2}{\omega_p}\sqrt{2\omega\nu}$ est proche de l'unité et le métal est fortement réfléchissant. Ce régime est ainsi caractérisé par une dépendance en $\nu^{1/2}$ de la réflectivité.

- Si $1 \ll \omega\tau \ll \omega_p\tau$:

$$n^2(\omega) \simeq 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega} + \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \frac{i}{\omega\tau}$$

Dans ce régime, $n^2(\omega)$ est essentiellement réel et négatif ce qui implique que n est imaginaire pur et \mathcal{R} est encore proche de l'unité. A l'ordre le plus bas en ω , nous obtenons $\mathcal{R} \simeq 1 - 2\nu/\omega_p$, qui est encore très élevée et qui chute linéairement en ν .

- Si $1 \ll \omega_p\tau \ll \omega\tau$, on obtient :

$$n^2(\omega) \simeq 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega}$$

Ainsi, $\mathcal{R} = \omega_p/2\omega$ est très inférieure à l'unité et le métal est transparent aux fréquences grandes comparées à ω_p .

Ces trois régimes distincts pourront nous être utiles pour expliquer les variations de la réflectivité en fonction de l'évolution des températures et densités dans le matériau. Nous allons introduire les effets induits par un angle d'incidence de l'impulsion dans l'approximation d'une interface entre deux milieux homogènes indicés 1 et 2. La dépendance des coefficients de réflexion et de transmission à l'interface entre deux milieux en fonction de l'angle d'incidence sont donnés par les formules de Fresnel. Considérons une onde plane incidente dont la direction de propagation forme un angle ϑ_i avec l'interface entre ces deux milieux d'indice différent n_1 et n_2 . Une onde plane incidente se propageant dans la direction z d'un système de coordonnées orthogonales peut être représentée par :

$$\vec{\mathcal{E}}_i(\vec{r}, t) = \left(\vec{\mathcal{E}}_x + \vec{\mathcal{E}}_y \right) \exp[i(k_i z - \omega t)]$$

Lors de la réflexion de cette onde à la surface d'un matériau, en l'absence d'effets anisotropes, l'onde réfléchie s'écrit :

$$\vec{\mathcal{E}}_r(\vec{r}, t) = (r_p \vec{\mathcal{E}}_x + r_s \vec{\mathcal{E}}_y) \exp[i(k_r z - \omega t)]$$

et l'onde transmise :

$$\vec{\mathcal{E}}_t(\vec{r}, t) = [(1 - r_p) \vec{\mathcal{E}}_x + (1 - r_s) \vec{\mathcal{E}}_y] \exp[i(k_t z - \omega t)]$$

avec $k_i = k_r = \omega n_1/c$ et $k_t = \omega n_2/c$. Les conditions aux limites à l'interface imposent aux phases des trois faisceaux d'être égales dans le plan interfacial, ce qui revient à s'assurer de la conservation de l'impulsion :

$$\vec{k}_i \cdot \vec{x} = \vec{k}_r \cdot \vec{x} = \vec{k}_t \cdot \vec{x}$$

Cette relation se traduit par les lois bien connues de réflexion $\vartheta_r = \vartheta_i$ et de réfraction (ou de Snell-Descartes) $\sin \vartheta_t / \sin \vartheta_i = n_2/n_1$ qui spécifient les directions de propagation des ondes réfléchies et transmises. De par la continuité des composantes normales de $\vec{\mathcal{D}}$ et $\vec{\mathcal{B}}$ et des composantes tangentielles de $\vec{\mathcal{E}}$ et $\vec{\mathcal{H}}$ à travers l'interface, nous retrouvons les formules de Fresnel en fonction de la polarisation :

$$\left\{ \begin{array}{l} r_p^{1,2} = \frac{n_2^2 \cos \vartheta_i - n_1 \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \vartheta_i}}{n_2^2 \cos \vartheta_i + n_1 \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \vartheta_i}} \quad r_s^{1,2} = \frac{n_1 \cos \vartheta_i - \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \vartheta_i}}{n_1 \cos \vartheta_i + \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \vartheta_i}} \\ t_p^{1,2} = \frac{2n_1 n_2 \cos \vartheta_i}{n_2^2 \cos \vartheta_i + n_1 \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \vartheta_i}} \quad t_s^{1,2} = \frac{2n_1 \cos \vartheta_i}{n_1 \cos \vartheta_i + \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \vartheta_i}} \end{array} \right. \quad (8.2)$$

A travers ces relations bien connues, la réflectivité totale dépend fortement de l'angle d'incidence. De surcroît, dans le cas d'un milieu inhomogène, la réflectivité totale correspond à l'intégration des réflectivités partielles engendrées par les discontinuités des propriétés optiques à chaque interface du milieu discrétisé. Il convient néanmoins de se rappeler des formulations simples que nous venons d'établir pour garder une vision intuitive des mécanismes. Celle-ci n'est plus possible lors de la résolution de l'équation de Helmholtz, contenant cette double dépendance, nécessaire à la description correcte de l'absorption de l'onde par le métal.

8.1.2 Restitution des expériences

La réflectivité \mathcal{R} et la transmittivité \mathcal{T} sont définies respectivement comme le rapport des flux réfléchi et transmis sur le flux incident à l'interface air-solide. En réalité, les facteurs de réflexion et de transmission changent pendant la durée de l'impulsion en fonction des variations de densité et de température dans l'épaisseur de peau. Dans l'approximation d'un milieu d'indice variable, plongé dans un milieu d'indice $n_0 = n_N$, ils se calculent numériquement grâce à la résolution de l'équation de Helmholtz que nous avons développée au *chapitre 1* et dans l'*annexe A*. La réflectivité est alors déterminée de manière générale par le rapport des puissances réfléchies et incidentes alors que la transmittivité se déduit du rapport des puissances transmises et incidentes. Nous aurons l'occasion dans la suite de calculer également le coefficient d'absorption qui se déduit simplement de ces deux paramètres par la relation $\mathcal{A}_{p,s} = 1 - \mathcal{R}_{p,s} - \mathcal{T}_{p,s}$.

La dépendance en angle de l'absorption du faisceau laser incident par la cible est un facteur important pour une bonne optimisation de l'irradiation. Dans ce type d'expérience, le facteur de réflexion est déterminé comme la valeur moyenne intégrée sur le temps de la mesure. Nous le calculerons en pondérant par l'intensité incidente grâce aux expressions suivantes :

$$\overline{\mathcal{R}_{p,s}} = \frac{\int_0^\tau \mathcal{R}_{p,s}(t) |\mathcal{E}(t)|^2 dt}{\int_0^\tau |\mathcal{E}(t)|^2 dt} \quad \text{et} \quad \overline{\mathcal{T}_{p,s}} = \frac{\int_0^\tau \mathcal{T}_{p,s}(t) |\mathcal{E}(t)|^2 dt}{\int_0^\tau |\mathcal{E}(t)|^2 dt} \quad (8.3)$$

Dans le code DELPOR, la réflectivité et la transmittivité sont ainsi disponibles à chaque pas de temps. Lors d'une expérience, celle-ci est néanmoins intégrée sur le temps d'échantillonnage des données du système. Dans la suite, nous allons présenter deux types d'expériences auxquelles nous avons comparé nos simulations. Les premières ne sont pas résolues en temps, ce qui implique que la réflectivité et la transmittivité sont intégrées sur un grand intervalle de temps¹ ($\tau \rightarrow \infty$). Le second type d'expérience procure des données résolues sur une échelle de temps inférieure à la picoseconde. Nous pourrions donc comparer directement ces données moyennées sur un faible intervalle temporel à nos résultats instantanés² de simulation ($\tau \rightarrow 0$).

Nous serons amenés à présenter des résultats de simulation issus d'expériences numériques pompe-sonde au cours desquelles nous avons dû résoudre l'équation de Helmholtz pour chacune de ces impulsions. Dans ce cadre particulier, nous devons souligner qu'à chaque longueur d'onde incidente est associée une réflectivité et une transmittivité. Ainsi, au cours des expériences numériques présentées dans la suite, il convient d'être prudent. De la même manière que nous avons différencié les indices optiques pour l'impulsion pompe et l'impulsion sonde, précisons que les réflectivité et transmittivité associées à l'onde pompe sont différentes de celles liées à la sonde.

¹Pour ces expériences, nous avons intégré sur la durée de l'impulsion laser dans nos simulations.

²Dans ce cas, la réflectivité est intégrée sur le pas de temps Δt du code.

8.2 Expériences non résolues en temps

Nous allons exposer ici deux expériences réalisées dans le but d'étudier les propriétés optiques des plasmas de hautes densités. Elles nous permettront d'expliciter les dépendances en angle d'incidence et intensité de l'absorption. Elles ont l'originalité, par rapport à la majorité des expériences plus récentes sur le sujet, d'avoir été effectuées avec des impulsions dans l'Ultra-Violet (248 nm et 308 nm) et des intensités plus élevées. Leur simulation nécessite tout de même une description précise des propriétés solides lors du front de montée de l'impulsion ainsi qu'un modèle d'absorption plasma à la fin de l'impulsion.

8.2.1 Dépendance angulaire de l'effet de la polarisation

Fedosejevs *et al* ont mesuré l'absorption d'impulsions laser Kr*F incidentes de 250 fs sur des cibles solides d'aluminium et d'or en fonction de la polarisation et de l'angle d'incidence pour des intensités de 10^{14} W cm⁻² et de 2.5×10^{15} W cm⁻² [42]. Pour cela, la réflectivité totale a été mesurée en utilisant une sphère de Ulbricht pour mesurer la partie diffusée du faisceau réfracté, un calorimètre pour la composante réfléchie et des photodiodes pour les énergies incidentes et rétrodiffusées. Il est apparu un maximum d'absorption d'environ 60% pour les polarisations p à $(54 \pm 3)^\circ$ pour l'aluminium et à $(57 \pm 3)^\circ$ pour l'or à 10^{14} W cm⁻². La pré-impulsion était suffisante pour créer un pré-plasma en surface à 2.5×10^{15} W cm⁻², nous ne comparerons donc pas les données expérimentales à nos simulations. En effet, l'absorption de l'impulsion principale est accrue par la présence de ce plasma sous-dense préformé. Dans ces expériences et dans les simulations que nous avons réalisées, le faisceau incident a une composition de polarisation compliquée : 93 % de polarisation p et 7 % de polarisation s dans le cas d'une polarisation dite « p », ou en proportion inverse pour un faisceau de polarisation dite « s ».

La figure (8.1) montre la réflectivité en fonction de l'angle d'incidence pour des polarisations s et p . Les réflectivités simulées ont été calculées grâce à l'expression (8.3), où la valeur moyenne s'applique sur la durée de l'impulsion laser. La polarisation s augmente avec l'angle d'incidence alors que la polarisation p admet un angle d'incidence où la réflectivité est minimale. Cette différence de comportement s'explique par le fait que l'onde p possède une composante colinéaire au gradient de densité plasma. Fedosejevs *et al* ont effectué des calculs de réflectivité basés sur les formules de Fresnel-Drude [17]. Un modèle de variation de densité en marche d'escalier ne leur a pas permis de reproduire la valeur de l'angle minimum, alors que des gradients linéaires ou exponentiels de densité se sont montrés plus appropriés. Ils ont ainsi mis en évidence que la valeur de cet angle de réflectivité minimale dépendait essentiellement du profil de densité électronique. Il est néanmoins apparu que l'angle maximum d'absorption, lorsque la réflectivité est minimale, correspond à l'obtention de la densité critique du plasma. Aux plus fortes intensités, ce mécanisme s'accompagne d'une absorption résonnante, provoquant un pic d'absorption marqué. Il est causé par l'oscillation plasma produite par la composante longitudinale du champ.

Même si des ondes plasma peuvent être excitées, la quantité d'énergie déposée est supposée être indépendante du mécanisme de dissipation [37, 82].

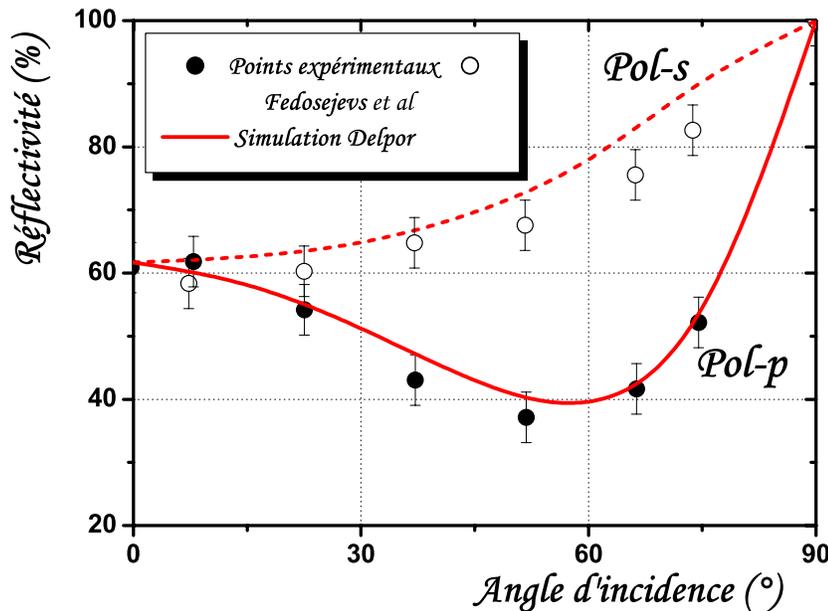


FIG. 8.1 – Dépendance de la réflectivité en fonction de l'angle d'incidence pour une impulsion de 248 nm polarisée s et p sur une cible d'Aluminium à $10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ (250 fs). Le minimum de réflectivité est obtenu à $(54 \pm 3)^\circ$.

La réflexion minimale se produit à un angle calculé à 57° . Eidmann *et al* avaient comparé ces résultats expérimentaux à leurs simulations hydrodynamiques [37]. Toutefois, ils avaient déterminé un angle correspondant à l'absorption maximale à environ 70° dans leurs calculs. Ils avaient alors attribué ce désaccord au fait qu'ils ne tenaient pas compte de la dépolarisation dans leur expression du champ électromagnétique. Nous avons, nous aussi, pu observer cette tendance à surestimer l'incidence d'absorption maximale avec une impulsion purement polarisée p . Cette surestimation est corrigée par l'introduction de la dépolarisation de l'onde p par l'adjonction d'une faible portion d'onde s (7 %).

Ces simulations numériques nous permettent de révéler de sérieuses différences dans la nature de l'absorption des composantes s et p par la matière chauffée. Lors de la création d'un fort gradient de densité électronique en surface, les modèles simples de calcul des champs électromagnétiques entre deux interfaces ou dans l'épaisseur de peau ne sont plus réalistes et il est indispensable de résoudre l'équation de Helmholtz pour accéder à l'énergie effectivement déposée. Nous voyons qu'une modélisation monodimensionnelle du métal peut s'avérer suffisante pour tenir compte des effets d'angle et de polarisation de l'impulsion. De plus, le fait que nous retrouvons le bon angle d'absorption maximale montre que l'hydrodynamique du système est bien reproduite par nos simulations. Nous allons maintenant évaluer la dépendance en intensité de ces deux types de polarisation en fixant l'angle d'incidence.

8.2.2 Dépendance en intensité de la réflectivité

La dépendance en intensité de la réflectivité mesurée a fait l'objet d'une étude particulière par Milchberg *et al* pour en déduire l'évolution de la résistivité de l'aluminium lors de la transition solide-plasma [100]. Il s'agit d'une des premières tentatives pour déterminer la dépendance de la résistivité en fonction de la température électronique. Celle-ci a été étudiée pour une cible d'aluminium d'une densité proche de celle solide pour une intensité variant sur une gamme de quatre ordres de grandeur, de 5×10^{11} à 10^{14} W cm^{-2} . La réflectivité a été mesurée après réflexion d'impulsions laser de 308 nm polarisées linéairement et focalisées sur la cible avec une lentille de 200 nm ($f/10$) avec une orientation de 45° par rapport à la cible. Des impulsions d'une durée d'environ 400 fs étaient délivrées à une fréquence de 10 Hz.

La cible a été confectionnée par un dépôt d'aluminium de 400 Å sur un substrat de verre. L'épaisseur choisie provient du fait que pour des dépôts plus importants, la réflectivité reste constante en fonction de l'épaisseur. Les auteurs font remarquer que la surface oxydée des cibles n'est pas censée jouer un rôle puisque l'épaisseur de l'oxyde (≤ 20 Å) ne représente pas plus de 10 % de la profondeur d'absorption optique.

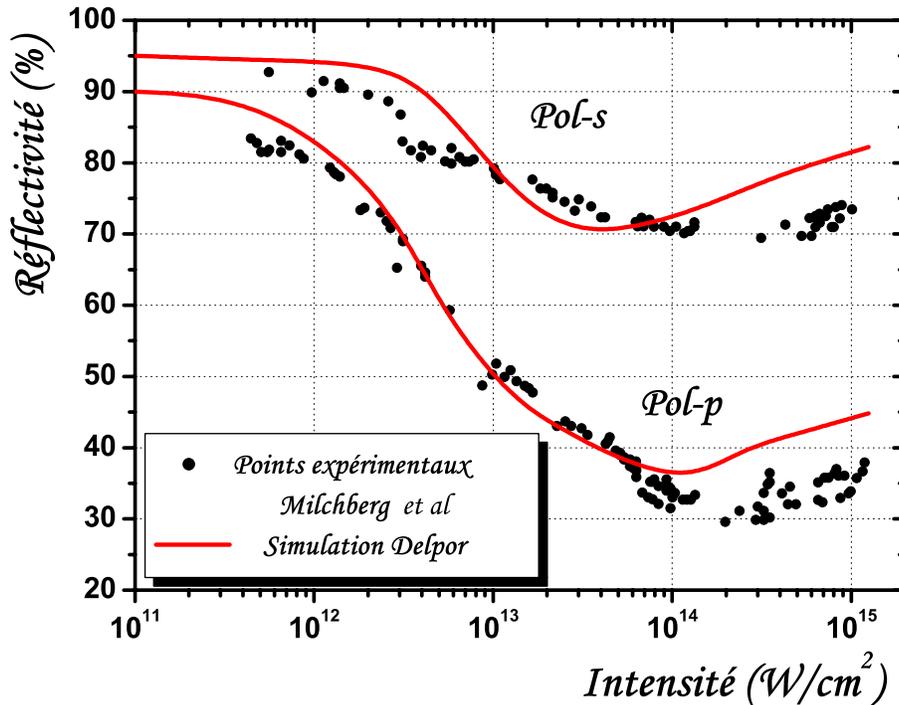


FIG. 8.2 – Mesure et simulation de réflectivité en fonction de l'intensité dans une cible d'Aluminium pour une polarisation s et p . La longueur d'onde incidente est de 308 nm et la durée d'impulsion de 400 fs.

La figure (8.2) montre la réflectivité associée à des impulsions laser polarisées s et p pour des fluences comprises entre 20 mJ cm^{-2} et 2 kJ cm^{-2} . Les simulations réalisées avec DELPOR sont en bon accord avec ces mesures. Elles fournissent l'évolution des réflectivités à travers

l'expression (8.3) moyennées sur la durée de l'impulsion, pour chacune des intensités. Trois régions se discernent distinctement en fonction de l'intensité. Pour les faibles intensités, jusqu'à $10^{12} \text{ W cm}^{-2}$, la réflectivité est à peu près constante. Elle diminue très faiblement et correspond sans doute au premier régime de réflectivité que nous avons discerné dans la première section de ce chapitre. En effet, la température électronique n'est pas suffisamment élevée pour induire des fréquences de collisions très importantes. Ensuite aux intensités comprises entre 10^{12} et $10^{14} \text{ W cm}^{-2}$, la réflectivité chute avec l'augmentation de la température électronique et donc de la fréquence de collisions. La pente de chute correspond au second régime préalablement envisagé, où $\omega\tau$ devient supérieur à l'unité, ce qui correspond à une fréquence de collisions de $6.12 \times 10^{15} \text{ s}^{-1}$ à cette longueur d'onde. Enfin pour les intensités plus élevées, supérieures à $10^{14} \text{ W cm}^{-2}$, la réflectivité augmente. Nous pouvons attribuer ce désaccord observé pour ces hautes intensités au fait qu'expérimentalement la pré-impulsion est suffisamment importante pour produire une vapeur ou un plasma avant l'arrivée de l'impulsion principale.

Le bon accord observé entre les facteurs de réflexion théorique et expérimentaux illustrent les possibilités du modèle à reproduire les indices optiques pour une intensité permettant la formation d'un plasma pendant le temps de l'impulsion. Ceci laisse supposer qu'il nous est possible de simuler l'absorption de l'onde incidente dans ce régime de déséquilibre électron-ion, et ceci pour des durées d'irradiations plus longues ou pour une seconde impulsion consécutive à une première dans un intervalle de temps inférieur au temps de relaxation électron-ion.

Nous avons vu les propriétés de réflexion induites par une cible épaisse, dont la couche de matière chauffée en surface pouvait être composée de différents états thermodynamiques évoluant sur le temps de l'impulsion. Nous allons voir comment des expériences spécifiques peuvent nous permettre de suivre l'évolution d'un état thermodynamique unique sur des échelles de temps bien plus courtes. Nos simulations pourront ainsi fournir des informations quantitatives sur l'état du système.

8.3 Observation temporelle de la dynamique ultrarapide

Les mesures de réflectivité et de transmittivité des plasmas peuvent s'avérer très utiles pour étudier les phénomènes ultra-rapides en matière condensée, en particulier les changements d'état, ou pour obtenir des données de coefficients de transport dans les plasmas chauds et denses. Les expériences de type pompe-sonde permettent d'accéder à ces informations avec un échantillonnage temporel de l'ordre de quelques picosecondes grâce à l'utilisation des sources lasers ultra-brèves.

Ng *et al* ont déjà effectué des simulations hydrodynamiques pour étudier l'évolution temporelle de la réflectivité d'un plasma dense créé par un laser de 120 fs irradiant une cible mince [109]. Ils interprètent leurs résultats, obtenus à l'aide d'une sonde numérique en face avant, en dissociant trois étapes successives. Pendant l'impulsion laser, la fréquence de collisions augmente, entraînant ainsi une diminution de la conductivité électrique sur toute la longueur de diffusion électronique. Ceci produit une diminution de la réflectivité et une épaisseur de peau plus importante pour la sonde. Au bout d'un certain temps, la réflexion de l'onde sonde commence à être dominée par le choc. Le matériau très comprimé au niveau du front de choc présente une forte densité et ainsi une haute conductivité électrique, se comportant comme un miroir. Consécutivement au choc, l'onde de détente se propageant met la surface du matériau en vitesse, et la diminution de la densité due à l'hydrodynamique conduit à une diminution très rapide de la réflectivité. Les mêmes auteurs ont également montré que dans le cas d'une onde sonde en face arrière, les processus sont équivalents mais sont dominés par la conduction thermique électronique qui va chauffer la face arrière de la cible mince. Lorsque la conduction thermique devient dominante, le choc débouchant de la cible mince devient néanmoins mal défini. Si la fusion de la face arrière apparaît avant l'arrivée du choc, il n'y a plus de sortie d'un choc de la surface solide. Pendant ce temps, la réflectivité continue à décroître. Lorsque le choc atteint la face arrière, un pic de réflectivité est enregistré, ensuite l'onde de détente domine et la réflectivité décroît. Il est ainsi évident que les lasers femtosecondes offrent une opportunité unique d'étudier les phénomènes associés à des plasmas denses à deux températures. Les mesures de réflectivité fournissent de bons indicateurs des conductivités plasma et du taux de collisions électron-ion.

A titre d'illustration, nous allons étudier et simuler, au moyen du code DELPOR, deux expériences récentes présentant des résultats de mesures de réflexion et de transmission d'une impulsion laser sub-picoseconde (sonde) sur cible métallique irradiée elle-même par une impulsion laser subpicoseconde énergétique (pompe). Le matériau choisi pour ces études d'absorption optique est l'or car il s'agit d'un métal inerte et très pur. Ces deux séries de résultats expérimentaux vont nous permettre de comparer nos simulations à des expériences résolues en temps. L'effet de l'évolution thermodynamique du métal irradié sur les caractéristiques énergétiques et spectrales des impulsions sonde réfléchies et transmises pourra alors, par l'intermédiaire des simulations numériques, permettre de donner une interprétation physique aux phénomènes observés expérimentalement.

8.3.1 Evolution temporelle des propriétés optiques

Nous présentons ici les résultats issus de la publication de Widmann *et al* [158], auxquels nous allons juxtaposer nos simulations de réflectivité et de transmittivité calculées grâce aux expressions (8.3) avec ($\tau \rightarrow 0$). Une impulsion laser de durée à mi-hauteur 150 fs et de longueur d'onde 400 nm (pompe) est focalisée sur une cible d'or d'une épaisseur d'environ 28 nm avec une intensité proche de $10^{13} \text{ W cm}^{-2}$. La réflectivité et la transmittivité du plasma généré sont analysées au moyen d'une impulsion laser de même durée et de longueur d'onde 800 nm arrivant avec une incidence oblique de 45° sur la cible (sonde). Cette impulsion sonde est envoyée sur le plasma avec un retard imposé variant de 0 à 15 ps par rapport à l'impulsion pompe. Les énergies réfléchiées et transmises de cette impulsion sont alors mesurées par des photodiodes et comparées à l'énergie incidente pour en déduire une réflectivité et une transmittivité instantanées du plasma.

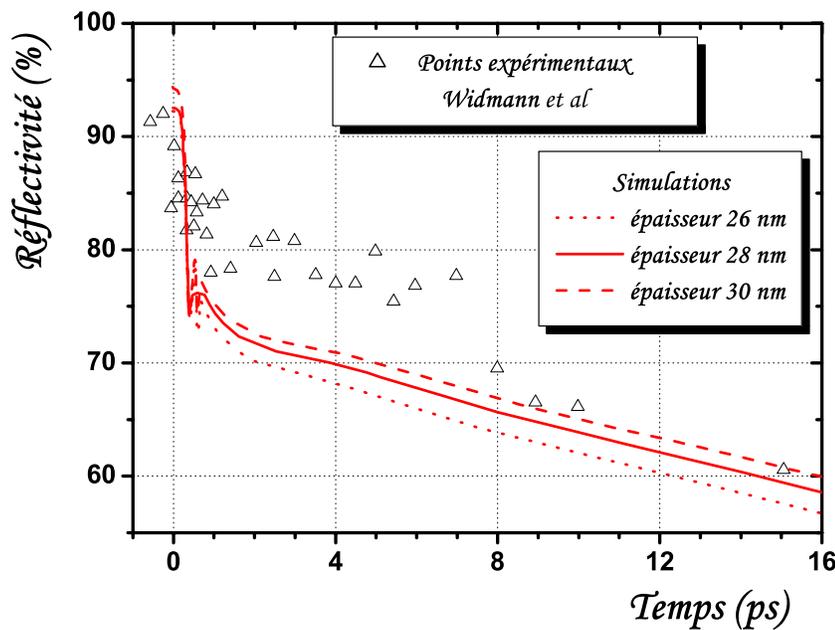


FIG. 8.3 – Comportement expérimental et numérique de la réflectivité de la sonde pour une fluence pompe de 0.5 J cm^2 sur une cible d'or [158].

Les données expérimentales reportées sur les figures (8.3) et (8.4) permettent de mettre en évidence trois régimes distincts. Le premier, au voisinage de l'instant initial sur les figures, est caractérisé par un changement très rapide de la réflectivité et de la transmittivité de l'échantillon. Cette décroissance peut être attribuée au chauffage de la cible par l'énergie du laser pompe. Sur cette échelle de temps, il faut rappeler que la température électronique est supérieure à la température ionique. La fin du chauffage laser est marqué par le commencement d'un second régime d'absorption au bout d'environ 1.5 ps. Il se remarque par un palier correspondant à un état de quasi-équilibre des propriétés optiques observées. Celui-ci dure environ 5 ps, puis une seconde chute de la réflectivité apparaît, accompagnée cette fois d'une augmentation de

la transmittivité. Il s'agit du dernier régime d'absorption que les auteurs attribuent au régime d'expansion hydrodynamique.

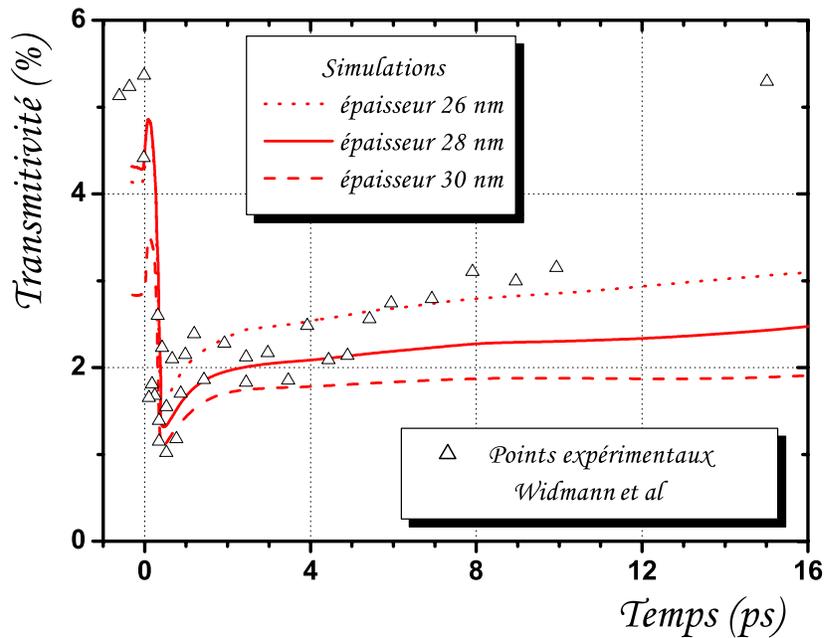


FIG. 8.4 – Comportement expérimental et numérique de la transmittivité de la sonde pour une fluence pompe de 0.5 J cm^{-2} sur une cible d'or [158].

Les simulations présentées sur les figures ont été réalisées pour différentes épaisseurs de cible et montrent un comportement similaire au comportement expérimental. Numériquement, deux régimes d'absorption sont clairement visibles. Le premier régime correspond effectivement au chauffage électronique et ionique pour lequel la température croît de manière isochore, ce qui induit une forte décroissance de la réflectivité et de la transmittivité du plasma. Dans cette phase, les propriétés de l'absorption de l'énergie laser sont régies par le déséquilibre thermique à travers les collisions électroniques. Celle-ci s'achève par la fusion du matériau qui serait alors atteinte en un temps inférieur à la picoseconde. La cible s'étend alors sous l'effet de l'hydrodynamique. La baisse de densité du matériau produit l'augmentation de la transmittivité ainsi que la chute de la réflectivité. Le palier d'équilibre à densité constante, mis en évidence par l'expérience dans les 5 premières picosecondes, ne peut pas être interprété par les simulations effectuées et traduit, sans doute, une lacune dans le modèle utilisé.

Cette première étude souligne la variété des propriétés qui peuvent être étudiées par une sonde fournissant une résolution temporelle de l'ordre de la picoseconde. Nous allons voir maintenant un second type d'expérience pompe-sonde où la résolution temporelle est inférieure à la durée de l'impulsion pompe et où les phases des ondes laser sont déterminées, ce qui permet d'accéder à d'autres caractéristiques du plasma durant et après le passage de l'impulsion pompe.

8.3.2 Application de l'ellipsométrie au sondage de l'état de matière

Nous allons présenter ici des résultats provenant d'expériences d'ellipsométrie, réalisées par Yoneda *et al* [105, 162]. Cette expérience originale permet d'accéder non seulement à la réflectivité mais aussi à la phase. L'ellipsométrie est une méthode à deux faisceaux dans laquelle une des deux composantes polarisées sert de référence pour l'amplitude et la phase de l'autre. Nous présenterons succinctement le diagnostic résultant de ce type d'expérience. Ceci nous permettra de définir les quantités mesurées par l'expérience, que nous comparerons à nos simulations dans lesquelles nous avons imposé des conditions similaires d'interaction.

L'ellipsométrie est une technique optique visant à déterminer les propriétés des surfaces et des films minces. Elle est basée sur le fait que lorsque la lumière linéairement polarisée est réfléchiée à incidence oblique, l'onde réfléchiée est elliptiquement polarisée. La forme et l'orientation de l'ellipse dépendent de l'angle d'incidence et de la polarisation de l'onde incidente et des propriétés de réflexion du matériau. Il est alors possible de mesurer la polarisation de la lumière réfléchiée avec une lame quart d'onde suivie d'un analyseur. Une onde plane incidente se propageant dans la direction z et l'onde réfléchiée à la surface du matériau s'écrivent :

$$\begin{cases} \vec{\mathcal{E}}_i(\vec{r}, t) = (\vec{\mathcal{E}}_x + \vec{\mathcal{E}}_y) \exp[i(kz - \omega t)] \\ \vec{\mathcal{E}}_r(\vec{r}, t) = (r_p \vec{\mathcal{E}}_x + r_s \vec{\mathcal{E}}_y) \exp[i(kz' - \omega t)] \end{cases}$$

Dans le système de coordonnées choisi, les axes x et z définissent le plan d'incidence et l'axe y est perpendiculaire à ce plan. Les réflectivités r_p et r_s contiennent l'action de l'échantillon sur la composante parallèle (p) et la composante perpendiculaire (s) au plan d'incidence. Les propriétés optiques du matériau se déduisent des propriétés des ondes incidentes et réfléchiées à travers les amplitudes et les phases de chacune d'entre elles. Le rapport des intensités s'écrit :

$$\left(\frac{I_r}{I_i} \right)_p = \frac{|r_p \mathcal{E}_x|^2}{|\mathcal{E}_x|^2} = |r_p|^2 = \mathcal{R}_p \quad (8.4)$$

$$\left(\frac{I_r}{I_i} \right)_s = \frac{|r_s \mathcal{E}_y|^2}{|\mathcal{E}_x|^2} = |r_s|^2 = \mathcal{R}_s \quad (8.5)$$

Contrairement à la réflectométrie, une seule mesure ellipsométrique permet d'accéder à deux paramètres. En conséquence, les parties réelles et imaginaires de la fonction diélectrique complexe $\tilde{\epsilon}$ sont directement accessibles sans avoir recours à plusieurs mesures ou à une analyse de type Kramers-Kronig [113]. De plus, les mesures ellipsométriques sont relativement insensibles aux fluctuations de la source ou à l'état de rugosité en surface du matériau. Alors qu'en réflectométrie des pertes d'énergie sont possibles, liées au fait qu'une partie de la lumière peut être réfléchiée en dehors de l'angle solide de l'instrument de mesure, notons que l'intensité absolue n'est pas nécessaire en ellipsométrie.

Dans l'expérience de Yoneda *et al*, un faisceau pompe de 300 fs amplifié par un laser excimer Kr*F d'une fréquence de 248 nm a été utilisé. Le plasma créé par cette impulsion a été sondé à l'aide d'une impulsion de 120 fs à 745 nm délivré par un laser Ti : Sapphire incliné de l'angle permettant un maximum d'absorption en polarisation (p), soit 64° , par rapport au faisceau pompe et polarisé à 45° afin d'avoir l'égalité des composantes (s) et (p). Leur expérience fournit l'évolution temporelle de deux quantités indépendantes. La première, X , dépend uniquement du rapport des réflectivités (s) et (p), et la seconde, Y , dépend également de la différence de phase (δ) entre ces deux polarisations :

$$\begin{cases} X = \frac{r_p^2}{r_s^2} = \frac{\mathcal{R}_p}{\mathcal{R}_s} \\ Y = \frac{(I_3 - I_4)}{(I_3 + I_4)} = \frac{2 |r_s| |r_p| \sin(\delta)}{|r_s|^2 + |r_p|^2} \end{cases} \quad (8.6)$$

Les résultats expérimentaux obtenus, montrant l'évolution de ces deux quantités, sont présentés sur les figures (8.5) et (8.6) suivantes. Nous y avons ajouté les simulations numériques correspondantes, pour les deux fluences données, réalisées au moyen du code DELPOR.

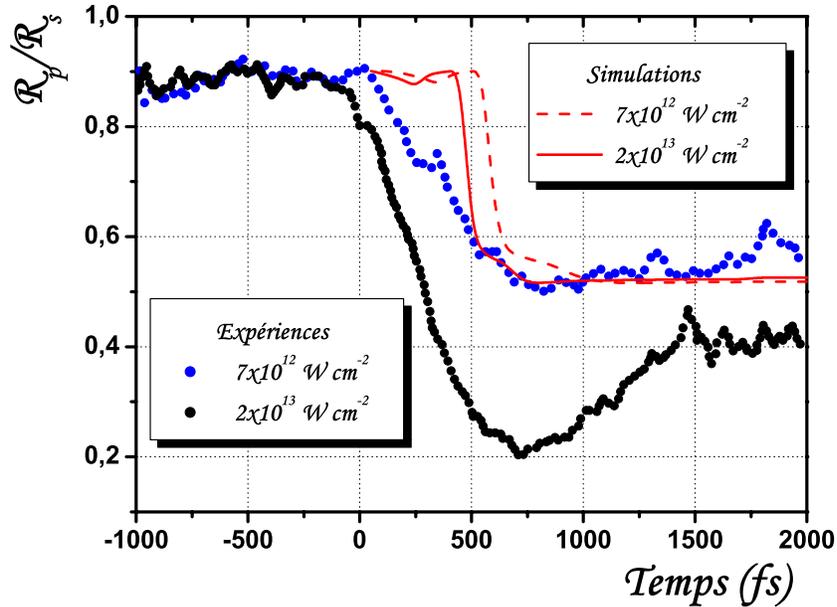


FIG. 8.5 – Dépendance temporelle du rapport des réflectivités p et s (X) dans une cible d'or pour deux intensités distinctes du laser pompe.

Le sursaut sur les courbes expérimentales ainsi que sur nos simulations présentées pour (X) reflète le premier changement d'état à 300 fs. Dans nos simulations, le point de fusion marque le début de l'expansion de la cible. Le minimum obtenu du rapport des réflectivités correspond au maximum atteint par le taux de collisions dans le matériau soit au maximum de température

et donc à l'instant de la thermalisation électron-ion. Cette relaxation semble avoir lieu très tôt, dans la première picoseconde.

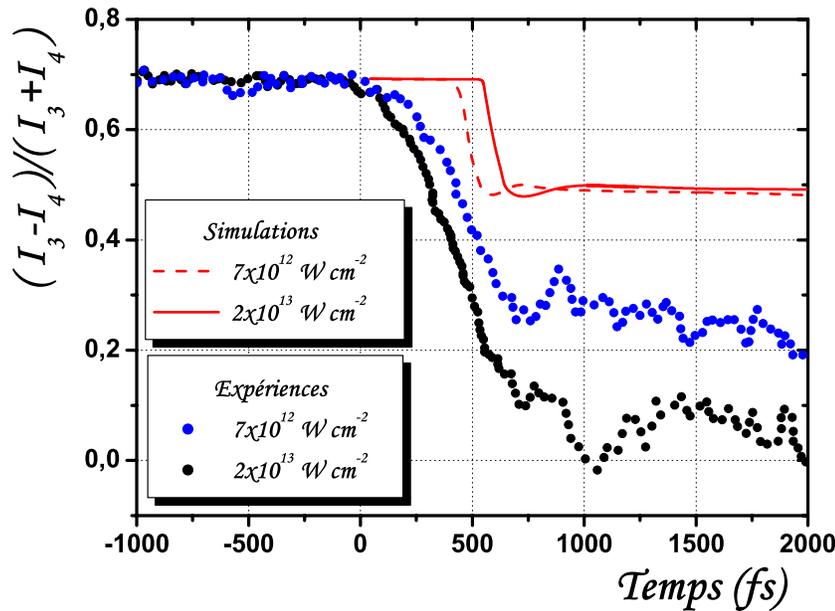


FIG. 8.6 – Dépendance temporelle du rapport des intensités (Y) dans une cible d'or pour deux intensités distinctes du laser pompe.

Pour l'intensité la plus faible, la simulation numérique restitue correctement le rapport $X = \mathcal{R}_p/\mathcal{R}_s$ avec un léger retard pour la décroissance. La restitution de la seconde quantité (Y) est moins performante. Pour l'intensité la plus forte, la simulation ne réussit pas à rendre compte de la forte disparité des résultats expérimentaux en fonction de l'intensité du laser pompe.

Par contre, pour les deux intensités, nous obtenons une courbe unique sur le diagramme de la figure (8.7) page suivante. Ces courbes présentent les trajectoires ellipsométriques dans le plan (X, Y) . Nous pouvons noter que les courbes expérimentales ne sont pas identiques à celles reportées précédemment, pour (X) et pour (Y) , ce qui tend à montrer que les intensités ne sont pas identiques à celles utilisées dans nos simulations, pour lesquelles nous avons gardé les intensités utilisées précédemment. Nous voyons clairement que nos simulations ne permettent pas de distinguer des effets différents lors de l'augmentation de l'intensité, puisque nos deux courbes se superposent presque. Dans cette situation, il est difficile de donner une interprétation des résultats obtenus.

Dans le plan (X, Y) , caractéristique de l'état thermodynamique du plasma, les points se placent sur une courbe assez peu dispersée dans le cas de l'intensité $7 \times 10^{12} \text{ W cm}^{-2}$. Ce n'est pas le cas pour l'intensité de $3 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$, où les points obtenus au-delà de la première picoseconde font apparaître un nuage totalement en dehors de la courbe principale. Ainsi, dans le cas des faibles intensités, le retour s'effectue par le même chemin que pendant le chauffage,

contrairement au cas des plus hautes intensités. Les auteurs expliquent ce comportement par la formation d'ions d'or négatifs due à la recombinaison. Celle-ci serait directement liée au refroidissement rapide du plasma retrouvant sa neutralité en raison de la forte affinité électronique de l'or (2.3 eV) à comparer au potentiel d'ionisation élevé (9.2 eV). La courbe principale obtenue avec la faible intensité et les premiers instants de la forte intensité correspond à une ionisation simple de l'or durant le chauffage laser et en plus, pour la faible intensité, au processus inverse, *i.e.* la recombinaison vers l'état atomique neutre.

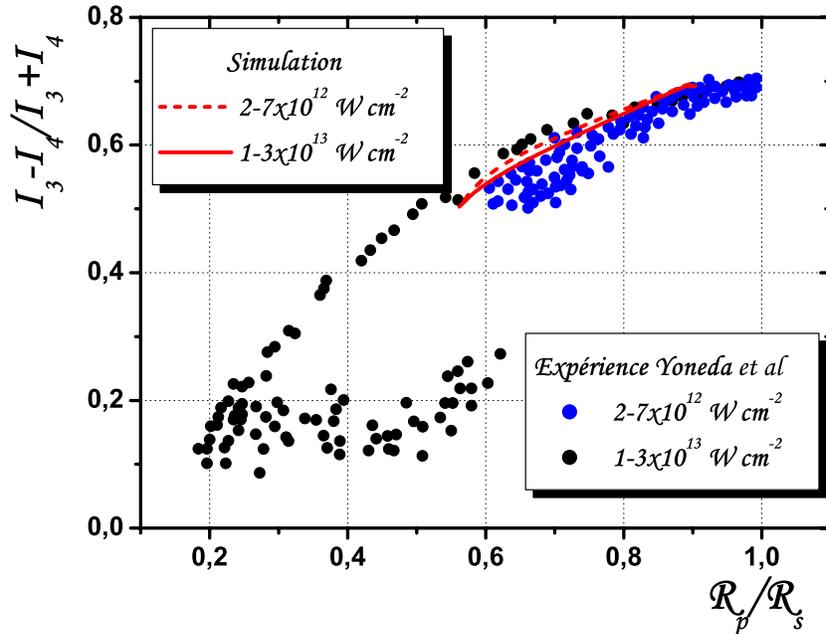


FIG. 8.7 – Résultats expérimentaux et calculés de trajectoires ellipsométriques dans une cible d'or pour deux intensités distinctes du laser pompe.

Les comparaisons de simulations numériques avec des expériences de type pompe-sonde peuvent ainsi s'avérer très enrichissantes pour comprendre les résultats expérimentaux et de valider ainsi les propriétés de transport introduites dans nos simulations. Les propriétés de la matière sont alors sondées et nous pouvons remonter à l'état de la matière au cours de sa transformation pendant et après une irradiation laser. Ces expériences effectuées dans le cas d'impulsions ultracourtes fournissent une méthode originale de visualisation de l'évolution ultrarapide du métal. Ceci ouvre de nouvelles perspectives pour modéliser des expériences déjà réalisées ou pour imaginer des expériences dédiées qui pourront permettre de valider les données d'équation d'état ou de coefficients de transport dans les plasmas denses.

Application à la mise en forme temporelle d'impulsions ultracourtes

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, la réflectivité et la transmittivité affichent une dépendance temporelle marquée. Celle-ci résulte du fort taux de chauffage et de la violente hydrodynamique engendrée. Ainsi, il est probable qu'avec des formes d'impulsion appropriées, nous pourrions améliorer la quantité ou la qualité des dommages occasionnés. C'est le sujet de ce nouveau chapitre où nous allons fournir une analyse des effets préférentiellement sollicités lors d'impulsions dont le profil temporel est particulier.

Ayant pour objectif d'apporter une meilleure compréhension des mécanismes fondamentaux, il est nécessaire d'envisager de nouvelles expériences dont la prévision des résultats peut fournir une pré-optimisation des conditions expérimentales. Ce type de confrontation peut également permettre de dégager les paramètres importants qui pourront être ajustés par l'expérience pour un meilleur résultat.

Nous présenterons dans un premier paragraphe une étude de l'effet d'une double-impulsion ultracourte sur les processus d'ablation que nous connecterons à la variation de la réflectivité optique. Nous verrons ensuite deux mises en œuvre expérimentales possibles. La première, programmable par valve optique, permet de générer deux impulsions séparées d'un retard ajustable pouvant aller jusqu'à quelques picosecondes. A l'inverse, la seconde permet une mise en forme temporelle passive, en dédoublant une impulsion unique de telle sorte que les deux pics soient retardés d'un temps inférieur à une picoseconde. Chacune d'entre elles fera l'objet d'une étude numérique dédiée pour estimer les paramètres thermodynamiques du matériau et ainsi rendre compte de l'état atteint par les matériaux irradiés.

9.1 Effet d'une double-impulsion sur l'absorption optique et l'ablation

Consécutivement à une irradiation laser, nous avons vu que les propriétés optiques et thermiques en surface du matériau évoluaient de manière significative. Il est alors légitime de penser qu'une seconde impulsion interagissant avec le milieu produirait des effets différents de ceux induits par la première impulsion rencontrant le solide froid. La variation des indices optiques au cours du temps entraîne une modification de la quantité et du profil de l'énergie incidente absorbée. Il paraît ainsi intéressant de pouvoir relier la réflectivité d'une impulsion principale aux effets potentiels qu'engendrerait une seconde impulsion. De plus, il a été observé expérimentalement une diminution des bourrelets entourant la zone d'ablation dans cette configuration [140]. La figure (9.1) illustre ce phénomène en comparant l'endommagement résultant d'impulsions simples et de double-impulsions de 180 fs.

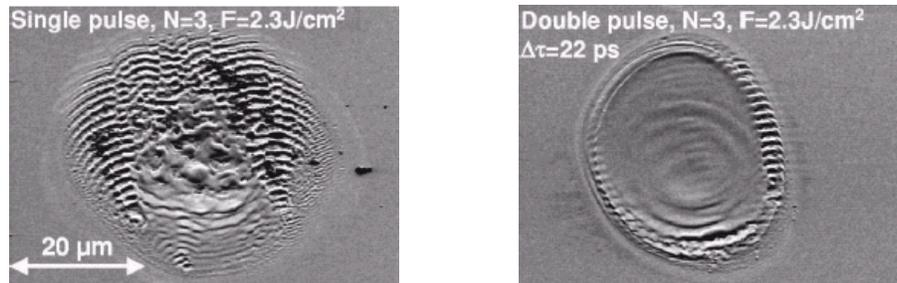


FIG. 9.1 – Photographies MEB de structures obtenues sur une cible de silicium à la suite de 3 impulsions laser à 780 nm de 180 fs, $F=2.3 \text{ J cm}^{-2}$ simples (à gauche) et doubles (à droite), retardées de 22 ps [140].

9.1.1 Introduction d'un décalage temporel entre deux impulsions

Dans ce type d'expérience numérique envisagée, la première impulsion sert à préparer le milieu en le portant à des conditions thermodynamiques plus appropriées pour améliorer l'efficacité de la seconde impulsion. Le délai séparant les deux impulsions serait alors piloté par la valeur de la réflectivité calculée. Nous avons étudié l'évolution de la réflectivité induite par une sonde de même longueur d'onde (800 nm dans les cas présentés dans cette partie) que l'impulsion pompe dans des échantillons épais de cuivre afin de limiter l'étude aux paramètres expérimentaux usuels et de se soustraire des effets plus complexes liés aux collisions interbandes. Nous présentons ci-dessous les réflectivités calculées pour des impulsions pompes de fluences variées.

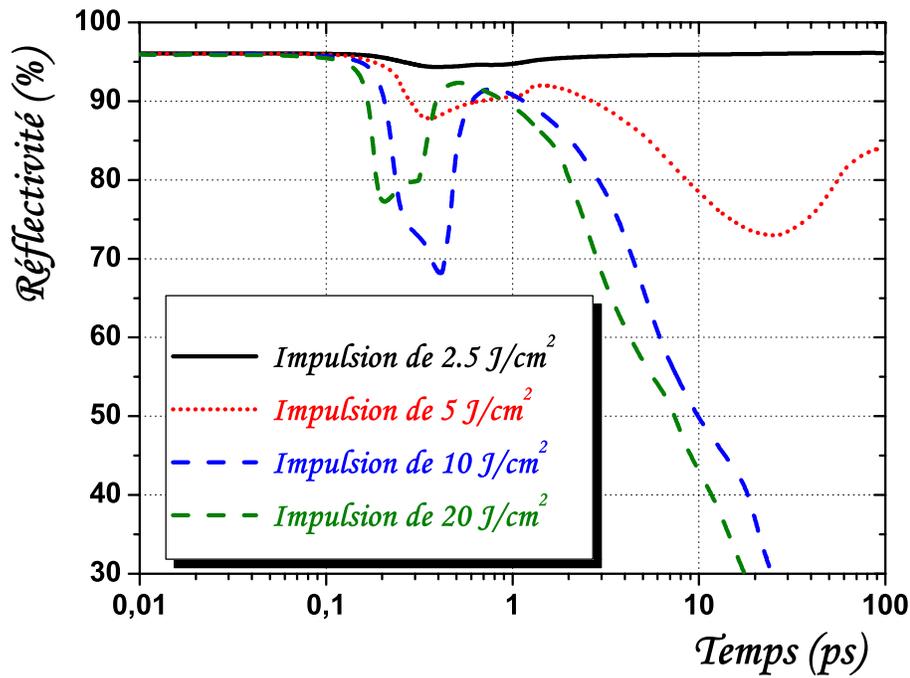


FIG. 9.2 – Evolution temporelle calculée de la réflectivité d’une sonde à 800 nm pour différentes fluences pompe sur une cible de cuivre. Les impulsions pompes (150 fs, 800 nm) et sondes arrivent avec une incidence normale à la cible.

Chacune de ces courbes montre que quelle que soit la fluence, la réflectivité admet des minima en fonction du temps. Une chute de réflectivité apparaît quelques centaines de femtosecondes après le début de l’irradiation. Elle résulte de la montée en température électronique qui intervient durant l’impulsion laser. La réflectivité est alors minimum lorsque la fréquence de collisions intrabandes ($e-e$) est maximum, *i.e.* quand le gaz d’électrons s’échauffe jusqu’à l’énergie de Fermi ou quand la totalité de l’énergie incidente a été déposée. Ensuite les collisions ($e-ph$) transfèrent l’énergie de la population d’électrons vers le réseau cristallin, produisant une diminution des collisions ($e-e$) et donc une augmentation de la réflectivité due au refroidissement électronique. Un second minimum apparaît uniquement pour les fluences supérieures à 3 J cm^{-2} . Il est atteint alors que la surface du matériau a été chauffée au dessus de la température de fusion mais en dessous de la température de vaporisation, correspondant à un maximum d’absorption dans le liquide avant son refroidissement par conduction thermique. Ce minimum advient, au plus tard, avant la relaxation complète des électrons vers les ions. Le temps de relaxation ($e-i$) est de plusieurs dizaines de picosecondes dans le cas du cuivre et de seulement quelques picosecondes pour l’aluminium. Enfin, si un plasma se détend à proximité de la surface de la cible, il absorbe l’impulsion sonde tant que sa densité électronique reste supérieure à la densité critique N_c , de l’ordre de $10^{21} \text{ e- cm}^{-3}$ à 800 nm. Alors, si le plasma se détend et atteint une densité inférieure à N_c , la réflectivité rechute comme le montre les courbes en tirets de la figure (9.2) pour des fluences supérieures à 10 J cm^{-2} .

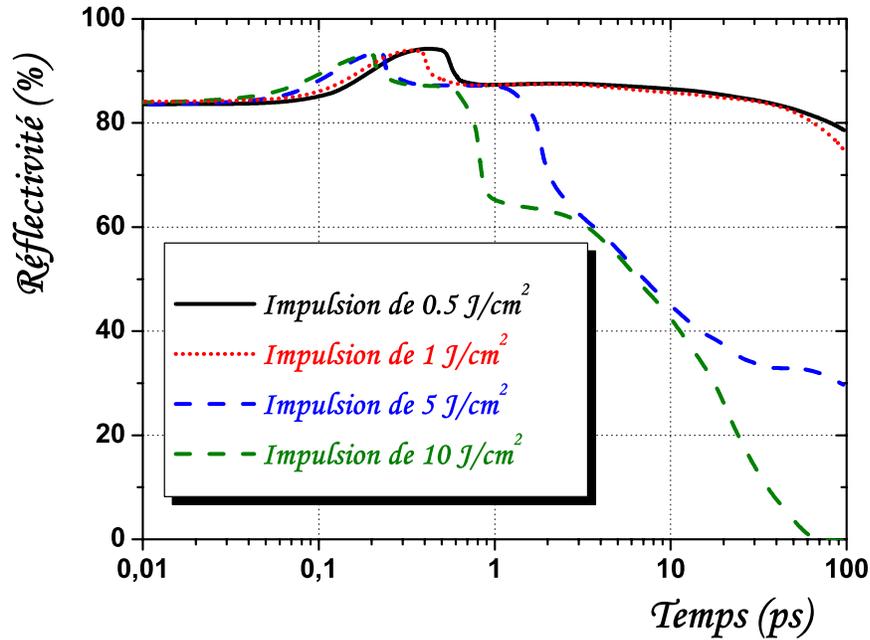


FIG. 9.3 – Evolution temporelle calculée de la réflectivité d’une sonde à 800 nm pour différentes fluences pompe sur une cible d’aluminium. Les impulsions pompe (150 fs, 800 nm) et sonde sont à l’incidence normale.

Similairement à la figure précédente, nous présentons l’évolution temporelle de la réflectivité pour une cible d’aluminium sur la figure (9.3). Ces courbes révèlent un comportement inverse durant la première picoseconde puisque la réflectivité augmente. Cet accroissement de la réflectivité résulte de l’augmentation de la fréquence de collisions qui privilégie les transitions interbandes pour ce métal à 800 nm. Nous avons discuté de ce mécanisme au cours du *chapitre 7* où nous avons mis en évidence la baisse de l’absorption alors que l’intensité incidente augmentait (§ 7.4). Nous avons supposé que lorsque la fusion du matériau intervient, les collisions ($e-e$) ne permettent plus l’absorption des photons et seules les collisions ($e-i$) autorisent l’absorption du rayonnement incident. L’augmentation de la température ionique amplifie alors la fréquence de collisions ($e-i$) et la réflectivité diminue. Comme pour le cuivre, la baisse de la densité électronique en surface pour les deux fluences les plus élevées (5 et 10 J cm⁻²), entraîne une forte baisse de la réflectivité qui s’accroît avec le temps puisque la surface se détend.

Nous avons ainsi clairement mis en évidence l’existence de trois régimes distincts de fluence associés aux changements de propriétés de la matière irradiée. Nous allons voir maintenant pour trois fluences (2.5 J cm⁻², 5 J cm⁻², 10 J cm⁻²) spécifiques à chacun de ces régimes l’effet d’une seconde impulsion retardée dans cet intervalle de temps. Sur la figure (9.4), nous avons représenté le type d’impulsion simulée, composée d’une première impulsion, suivie d’une seconde retardée de 200 fs à 100 ps. Nous différencierons dans les deux prochaines parties le cas d’une seconde impulsion faiblement énergétique du cas de deux impulsions d’égale énergie.

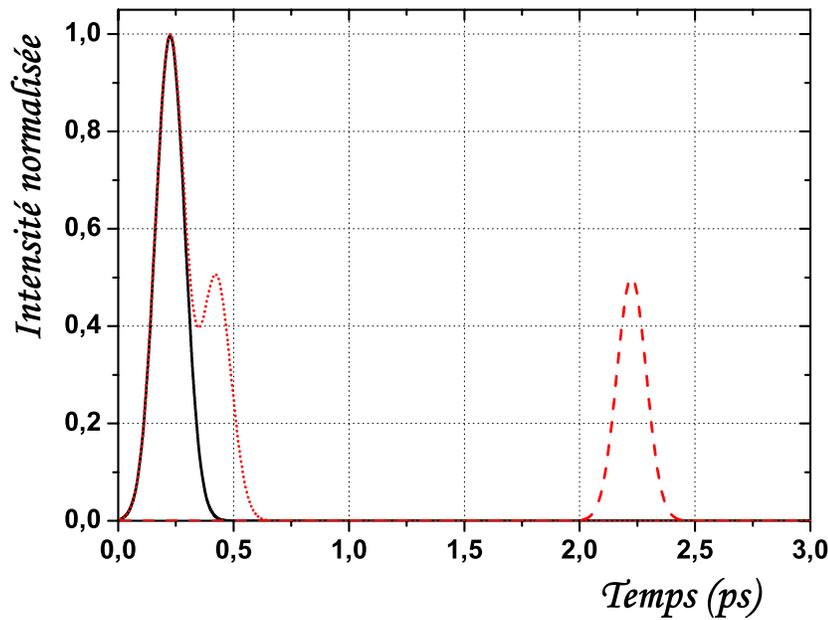


FIG. 9.4 – Délai imposé entre deux impulsions pour une seconde impulsion d'intensité variable (égale ou 10% de l'énergie pompe). Le cas du recouvrement des deux impulsions a également été considéré (courbe en pointillé).

9.1.2 Cas de deux impulsions d'intensité différente

L'intérêt de cette étude est de mettre en évidence le lien direct existant entre la réflectivité de la sonde, et le taux d'ablation engendré par une seconde impulsion. La fluence de celle-ci a été arbitrairement fixée à 10 % de la valeur de la fluence de pompe (soit 0.25, 0.5 et 1 J cm⁻²). Le choix d'une faible fluence réside dans la volonté de limiter l'effet induit par le front de montée de la seconde impulsion qui va bien sûr modifier le résultat global. En effet, dans le cas d'une impulsion plus intense, la réflectivité et le taux d'ablation dépendent à la fois du retard et de l'intensité de la seconde impulsion. Afin de se soustraire de cette ambiguïté, nous allons étudier dans un premier temps ce cas plus simple à analyser. Il s'agit en quelque sorte d'une expérience pompe-sonde à la même longueur d'onde (800 nm), et nous noterons « sonde » la post-impulsion.

Conjointement à la réflectivité d'une sonde modélisée dans un cas continu, nous avons calculé le taux d'ablation \mathcal{T} engendré par la seconde impulsion. Pour faciliter la comparaison entre les différents cas de fluence représentés, le taux d'ablation a été normalisé à celui qu'induirait une seule impulsion de fluence égale à la somme des fluences pompe et sonde, *i.e.* à un délai temporel nul. Le rapport $\mathcal{T}/\mathcal{T}_0$ peut ainsi être supérieur ou inférieur à l'unité.

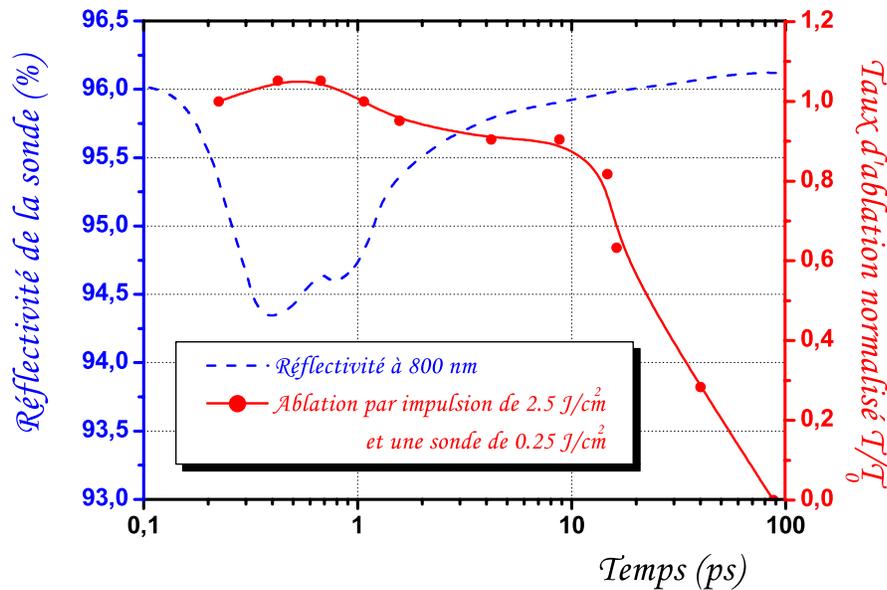


FIG. 9.5 – Comportement numérique de la réflectivité de la sonde pour une fluence pompe de 2.5 J cm^{-2} sur une cible de cuivre. Le taux d'ablation normalisé est reporté parallèlement.

Dans ce premier exemple de faible intensité pompe, figure (9.5), la réflectivité mesurée par la sonde n'admet qu'un seul minimum correspondant au maximum de la fréquence de collisions ($e-e$). Il intervient au terme de l'impulsion principale, quand les électrons libres du solide cristallin ont terminé d'absorber une partie de l'énergie incidente. Une fois transférée sur les ions, l'énergie étant insuffisante pour chauffer ceux-ci de manière significative, typiquement au dessous de la température de fusion, l'absorption reste dominée par les collisions ($e-e$) et ($e-ph$). La conductivité thermique électronique diffuse l'énergie en surface vers l'intérieur du matériau en quelques picosecondes. Ajouté à cela, la pression électronique ayant détendu le matériau en surface, la densité électronique diminue. Ces deux processus de relaxation énergétique provoquent une diminution de la fréquence de collisions ($e-e$) et ainsi une augmentation de la réflectivité de la sonde comme nous l'avons précédemment décrit. Après quelques dizaines de picosecondes, cette dernière devient égale voire même légèrement supérieure, du fait de la diminution de densité en surface, à celle de la réflectivité initiale, froide et à densité solide.

Le taux d'ablation associé à cette seconde impulsion a été mesuré pour différentes simulations effectuées pour plusieurs délais répartis sur l'échelle de temps étudiée. Un maximum se détache de la courbe dans les premières centaines de femtosecondes. Il est indiscutablement associé au premier minimum en réflectivité et donc au maximum atteint par la température électronique. Ensuite, la réflectivité augmentant, le taux d'ablation baisse légèrement pendant la première dizaine de picosecondes. Un coude apparaît sur la courbe d'ablation, alors qu'à l'abscisse correspondante, celle de la réflectivité ne suggérerait en rien un changement de régime. Il s'agit du temps nécessaire au métal pour atteindre son maximum en température ionique à

la surface, dicté par la valeur du couplage ($e-ph$). Le liquide s'étend alors vers la surface libre, accompagné d'une chute de la densité. La seconde impulsion dépose ainsi son énergie dans une couche de liquide s'épaississant et en expansion dans les picosecondes qui succèdent. L'efficacité d'ablation de la deuxième impulsion diminue alors avec la baisse de la température de surface.

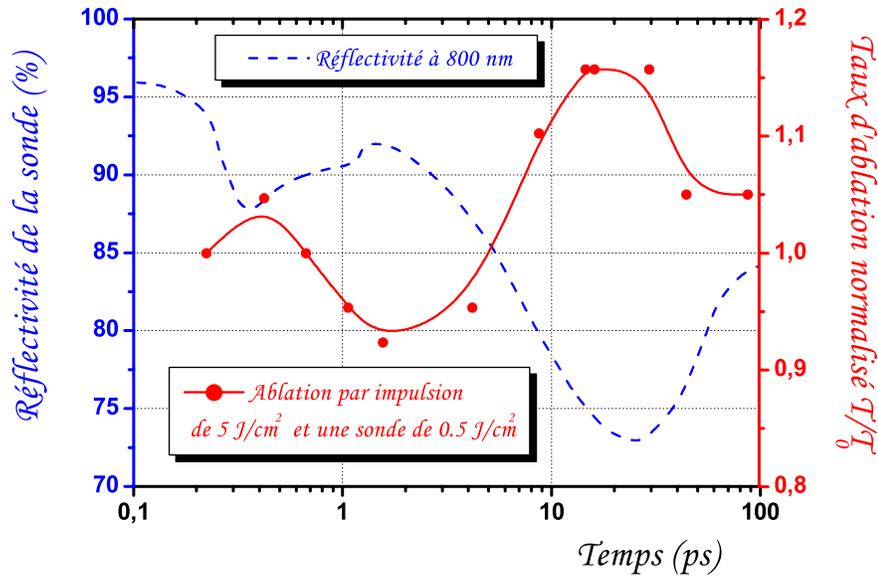


FIG. 9.6 – Comportement numérique de la réflectivité de la sonde et taux d'ablation normalisé pour une fluence pompe de 5 J cm^{-2} sur une cible de cuivre.

Un second exemple correspondant à une fluence pompe de 5 J cm^{-2} est reporté sur la figure (9.6). Dans ce cas, un comportement similaire au précédent est visible jusqu'aux premières picosecondes. Ensuite, l'énergie transférée sur les ions étant plus importante, les collisions ($e-i$) deviennent prépondérantes au bout d'environ 2 ps et la réflectivité chute avec la montée en température du matériau. Un second minimum est atteint après une vingtaine de picosecondes, temps à partir duquel le liquide en surface s'expand vers l'extérieur.

Le taux d'ablation admet quatre régimes distincts, directement liés aux trois extrema visibles dans la réflectivité. Le premier correspond au déséquilibre transitoire électronique et se caractérise par un taux d'ablation accru par rapport au cas de référence, sans délai temporel. Le second est un minimum lié à l'équilibre entre les fréquences de collisions ($e-e$) et ($e-i$), il est dû à la répartition de l'énergie des électrons vers les ions. Il s'ensuit une réaugmentation du taux d'ablation, lié à la hausse de la fréquence de collisions lors de la montée en température du liquide. Ce taux d'ablation dépasse alors le taux d'ablation de référence. Cette meilleure efficacité découle directement du surplus d'énergie absorbée. Le dernier régime s'explique par la diminution en température et en densité du liquide de surface à la suite de la relaxation complète de l'énergie.

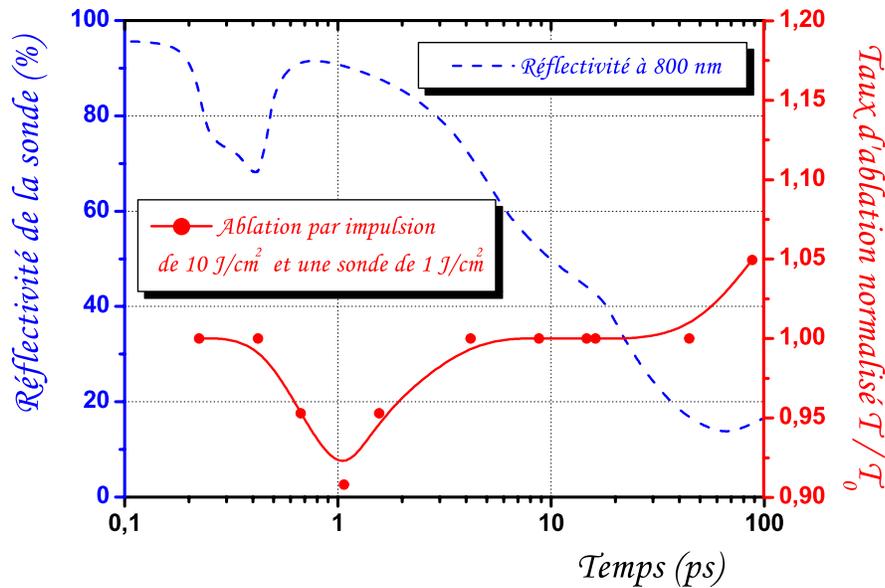


FIG. 9.7 – Comportement numérique de la réflectivité de la sonde et taux d’ablation normalisé pour une fluence pompe de 10 J cm^{-2} sur une cible de cuivre.

Enfin, un dernier exemple pour une fluence de 10 J cm^{-2} a été considéré figure (9.7). La réflectivité admet un premier minimum inférieur à 70 % à la fin de l’impulsion pompe pour les raisons évoquées précédemment. Le taux d’ablation reste alors très proche de celui de référence, la dynamique temporelle du faisceau influençant moins la fréquence de collisions électroniques, proche de son maximum. Lors du couplage (*e-i*), le taux d’ablation diminue et atteint rapidement un minimum puisque le temps nécessaire aux collisions (*e-i*) pour être dominantes n’est que de 1 ps. L’absorption de la seconde impulsion augmente ensuite avec la création du plasma en surface. Son expansion se prolongeant pendant toute la durée étudiée, la réflectivité diminue. Contrairement à l’exemple précédent, le taux d’ablation reste dans ce cas égal au cas de référence puisque même si l’énergie absorbée augmente, elle est transformée en énergie cinétique lors de l’expansion du plasma [29].

En définitive, nous avons attribué à chacun des régimes d’ablation une efficacité d’ablation en calculant le rapport entre la profondeur ablatée par la double-impulsion et celle ablatée par une seule impulsion. Il est apparu qu’un délai approprié entre les deux impulsions peut optimiser la quantité de matière ablatée. Ainsi, proche du seuil d’ablation, seule la réponse électronique joue un rôle dans les premiers instants de l’impulsion. Il est préférable d’utiliser un délai le plus court possible, provoquant une superposition des deux impulsions. Le cas d’une fluence intermédiaire présente un intérêt particulier puisqu’il a mis en évidence l’existence d’un maximum d’efficacité d’ablation pour un délai proche du temps de relaxation (*e-ph*), à environ

25 ps dans le cas du cuivre à 5 J cm^{-2} . Enfin, lorsqu'il y a création d'un plasma à plus haute fluence, il semble préférable de ne pas imposer de retard entre les deux impulsions.

9.1.3 Cas de deux impulsions de même intensité

Nous allons discuter, dans les exemples qui suivent, des effets induits par une double-impulsion dont les pics sont d'égales énergies. La configuration est identique à celle du paragraphe précédent, seule l'intensité de la seconde impulsion a été augmentée. Les courbes de réflectivité pour les différentes fluences pompes restent donc inchangées et nous ne détaillerons pas leurs évolutions. Nous ne nous intéresserons ici qu'à l'ablation engendrée par la seconde impulsion.

Dans le cas d'une seconde impulsion de faible énergie, nous avons mis en évidence l'évolution des propriétés du matériau. Nous allons pouvoir comparer cette évolution à celle imposée par une seconde impulsion qui modifie elle-même les propriétés du métal en surface. En effet, même si les impulsions sont de courte durée (150 fs), elles induisent une modification du matériau dans les premiers instants. Le front de montée de l'impulsion laser joue alors un rôle non négligeable dans la dépendance du taux d'ablation en fonction du retard imposé.

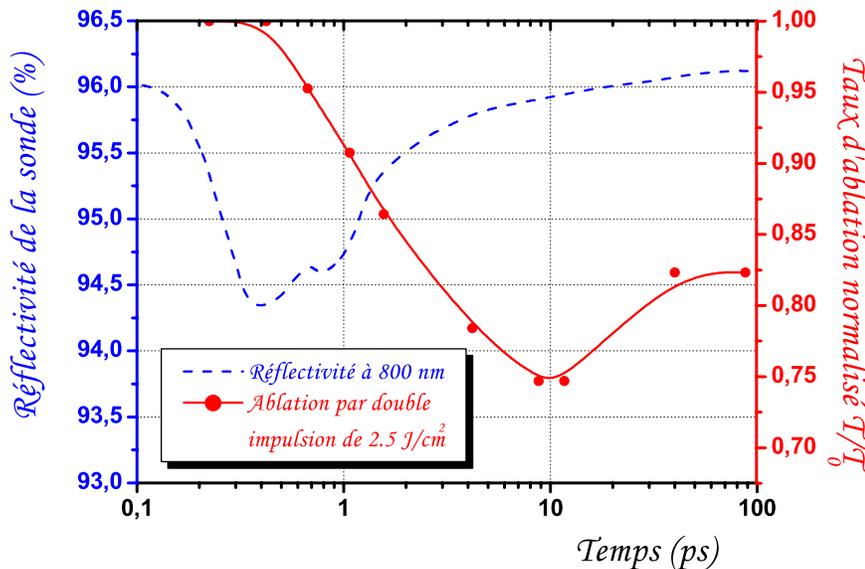


FIG. 9.8 – Comportement numérique de la réflectivité de la sonde pour une fluence pompe de 2.5 J cm^{-2} sur une cible de cuivre. Le taux d'ablation normalisé est reporté parallèlement.

Sur la figure (9.8), correspondant à une impulsion pompe de 2.5 J cm^{-2} , nous avons superposé la réflectivité d'une sonde appliquée continuellement et le taux d'ablation normalisé à celui provoqué par une simple impulsion de 5 J cm^{-2} . Ce dernier est maximum pour un retard minimum entre les deux impulsions dû à une montée en température électronique plus importante dans le cas d'une seule impulsion que dans celui à deux impulsions même lorsque celles-ci

se recouvrent. Le taux d'ablation diminue ensuite tant que le retard reste inférieur au temps de relaxation ($e-ph$). Enfin, il réaugmente lorsque la température ionique augmente jusqu'à son maximum, autour de 10 ps, temps à partir duquel la surface se refroidit. L'énergie absorbée diminue légèrement mais le rapport du taux d'ablation augmente car la densité électronique à la surface du matériau devient inférieure à la densité critique. L'impulsion n'est alors plus absorbée en surface et l'énergie pénètre plus profondément dans le matériau ce qui favorise l'ablation.

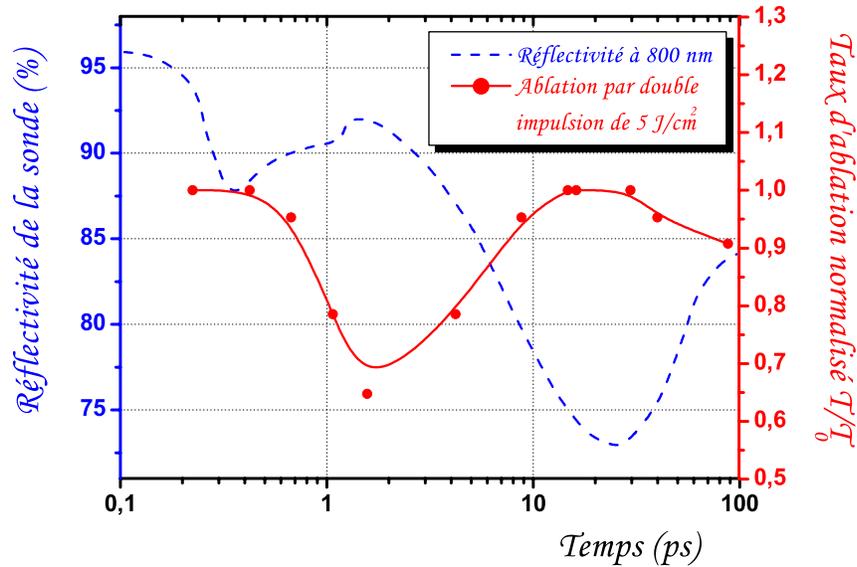


FIG. 9.9 – Comportement numérique de la réflectivité de la sonde et taux d'ablation normalisé pour une fluence pompe de 5 J cm^{-2} sur une cible de cuivre.

Deux impulsions consécutives de 5 J cm^{-2} ont ensuite été étudiées sur la figure (9.9). Contrairement au cas d'une faible impulsion, le rapport T/T_0 reste inférieur ou égal à l'unité lors du minimum de réflectivité à environ 20 ps. Ceci signifie qu'en terme de taux d'ablation, les effets produits par cette double-impulsion ne sont pas supérieurs à ceux d'une seule impulsion de 10 J cm^{-2} . En effet, comme nous pouvons le voir sur les figures (9.2) et (9.10), la réflectivité chute de manière conséquente durant l'impulsion laser de 10 J cm^{-2} , en raison de l'augmentation de la fréquence de collisions ($e-e$). Dans ce cas, les réflectivités lors de la seconde impulsion de 5 J cm^{-2} et la seconde moitié de l'impulsion unique sont toutes les deux proches de 70%. Même en fixant un retard optimal entre les deux pics, il en résulte que l'absorption d'énergie est équivalente à celle d'un seul pic.

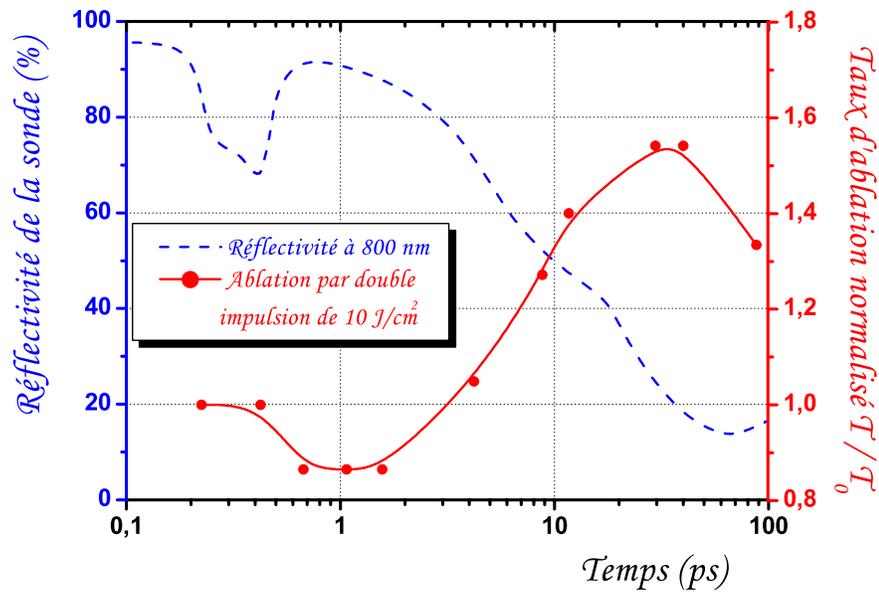


FIG. 9.10 – Comportement numérique de la réflectivité de la sonde et taux d'ablation normalisé pour une fluence pompe de 10 J cm^{-2} sur une cible de cuivre.

Le dernier cas que nous avons simulé est celui de deux impulsions de fluence de 10 J cm^{-2} représenté sur la figure (9.10). Le comportement du taux d'ablation engendré par cette double-impulsion montre que lorsqu'un gradient de densité plasma est créé en surface, la seconde impulsion est mieux absorbée. Ce résultat diffère du cas d'une post-impulsion de plus faible intensité puisqu'ici, rapporté au taux engendré par une seule impulsion de 20 J cm^{-2} , la détente en surface favorise l'absorption de la seconde moitié de l'impulsion. Ceci est dû au fait que durant l'absorption de la seule impulsion de 20 J cm^{-2} , la réflectivité atteint 68%, comme nous pouvons le constater sur la figure (9.2). Or, sur cette même figure, nous pouvons remarquer qu'à la suite d'une impulsion de 10 J cm^{-2} , il faut attendre environ 4 ps pour atteindre une telle réflectivité. Ce temps correspond exactement à la valeur du retard minimal permettant d'accroître le taux d'absorption sur la figure (9.10). Dans ce cas, nous voyons qu'il est nécessaire d'étudier les courbes de réflectivité des énergies simple et double pour déterminer le retard optimal. Néanmoins, nous n'avons pas d'informations sur la densité du plasma créé et nous pouvons remarquer que lorsque la densité critique est atteinte, soit à 40 ps dans cet exemple, l'efficacité d'absorption diminue et que, par conséquent, l'ablation engendrée chute également.

En conclusion, nous avons mis en évidence la corrélation qu'il existait entre la réflectivité et le retard optimal qu'il faut imposer pour accroître l'efficacité d'ablation. Nous avons montré que ce retard devait varier en fonction de la répartition d'énergie entre les deux impulsions. Il semble que la meilleure efficacité soit atteinte dans le cas d'une impulsion principale de fluence intermédiaire (5 J cm^{-2}), suivie d'une impulsion de plus faible énergie retardée d'un temps proche du temps de relaxation ($e-ph$), lorsque la température de surface est maximale. Dans le cas des plus fortes intensités, le dédoublement d'impulsion s'avère également être un cas favorable en terme d'énergie absorbée. Néanmoins, la qualité de l'ablation n'est sans doute pas intéressante pour des expériences de micro-usinage.

Dans la littérature, des résultats d'expériences de double-impulsions ont été présentés par Semerok *et al* [133]. Les quantités de matière ablatée obtenues après 30 double-impulsions ont été reportées pour des fluences de $2 \times 15 \text{ J cm}^{-2}$ ($2 \times 20 \mu\text{J}$ pour un diamètre de tache focale de $15 \mu\text{m}$). Leurs résultats semblent indiquer que seules les secondes impulsions retardées de moins de 10 ps contribuent à l'ablation. L'expérience de Le Harzic *et al* a qualitativement montré des effets similaires à notre cas d'une impulsion de 5 J cm^{-2} suivi d'une sonde de faible énergie [95]. L'efficacité maximum était obtenue avec un retard de l'ordre du temps de relaxation ($e-ph$). Le comportement observé est qualitativement bien reproduit mais l'expérience ne fournissait pas de résultats quantitatifs exploitables pour être directement confrontés à nos simulations.

Notre étude peut se généraliser à des double-impulsions de durées différentes, où la majeure partie de l'énergie peut être contenue dans l'un ou l'autre des deux pics. Les paramètres que nous pouvons faire varier sont nombreux : énergies respectives des deux pics, durées des impulsions et leur retard. Il n'est donc pas envisageable de présenter un exemple pour chaque type d'impulsion. Dans un cas similaire, ce trop grand nombre de double-impulsions possibles a conduit Primout à effectuer des simulations Monte-carlo pour dégager les paramètres les plus intéressants pour l'efficacité de production de rayonnement X [119]. Dans la suite, nous allons restreindre notre étude à deux cas expérimentaux précis, qui seront expérimentés prochainement à l'université de Saint-Etienne.

9.2 Mise en œuvre expérimentale

Nous allons à présent aborder deux types d'applications expérimentales différentes pour lesquelles nous allons développer nos résultats de simulation. La première concerne la programmation de la forme de l'impulsion à l'aide d'une valve optique et permet de répartir temporellement l'énergie laser incidente de façon à optimiser l'interaction. La seconde a pour objet la mise en forme temporelle de l'impulsion à l'aide cette fois d'une optique diffractive passive. Dans ces deux cas, après une description succincte du procédé expérimental, nous discuterons de l'énergie absorbée ainsi que de l'état atteint par la matière irradiée. Ce sera pour nous l'occasion d'appliquer et de voir les conséquences des modèles précédemment établis.

9.2.1 Mise en forme programmable par valve optique

La mise en forme temporelle par synthèse de Fourier des composantes spectrales se révèle être une technique très efficace pour contrôler et optimiser divers systèmes physiques en les acheminant dans des conditions thermodynamiques extrêmes [140, 143]. Elle est basée sur la modification de la phase spectrale de l'impulsion. Celle-ci est obtenue au moyen d'un masque de phase, constitué par un modulateur à cristaux liquides qui induit des indices de réfraction spatialement distincts. La forme temporelle de l'impulsion finale s'obtient alors en imposant des chemins optiques différents à chacune des composantes spectrales. En programmant ce masque de phase, il est possible de combiner algorithmes d'optimisation et mise en forme temporelle dans l'objectif de synchroniser l'excitation optique avec la réponse du matériau. Moduler la répartition temporelle de l'énergie permet alors d'induire des chemins thermodynamiques exotiques impossibles à atteindre avec des impulsions classiques.

Nous avons voulu comparer les résultats issus d'une impulsion classique à ceux liés à une impulsion dont la forme temporelle a été « optimisée ». L'impulsion dite classique est une gaussienne de 150 fs (FWHM) que nous avons représentée sur la figure (9.11). La figure (9.12) correspond à l'impulsion que nous souhaitons étudier. Celle-ci se présente comme une impulsion gaussienne de 150 fs (FWHM), contenant une énergie suffisante pour que le matériau atteigne la température de fusion en surface. En l'occurrence, pour une cible d'aluminium, nous avons fixé la fluence de la première impulsion à 0.5 J cm^{-2} . Une seconde impulsion, que nous appellerons post-impulsion, succède à la première et est maximale au bout de 5 ps. Ce temps est environ égal au temps de relaxation ($e-ph$) puisqu'il s'agit du temps nécessaire à la surface pour atteindre la température de fusion pour une énergie incidente (de 1^{ère} impulsion) proche du seuil d'ablation. La post-impulsion est censée être absorbée le mieux possible, ce qui correspond au cas où le liquide se forme en surface. L'énergie contenue dans cette seconde impulsion est dilatée temporellement, et nous l'avons modélisée par une gaussienne de durée FWHM égale à 3.2 ps. Deux fluences ont été testées dans la suite, 2 J cm^{-2} et 3 J cm^{-2} . Pour comparaison, le cas à une impulsion a été fixée de telle sorte que les fluences soient égales dans les deux cas (soit 2.5 ou 3.5 J cm^{-2}).

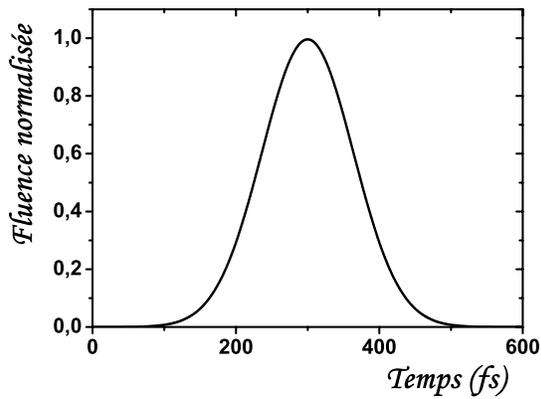


FIG. 9.11 – Simple impulsion gaussienne ($\tau^{FWHM} = 150$ fs).

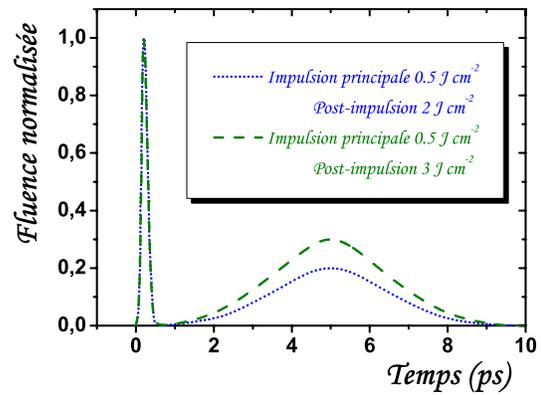


FIG. 9.12 – Double-impulsion ($\tau_1 = 150$ fs, $\tau_2 = 3.2$ ps).

Afin de visualiser les effets consécutifs à ces deux types d'impulsion, les températures ioniques sont reportées sur les figures (9.13) et (9.14) pour le cas à 2.5 J cm^{-2} . Les maxima sont atteints plus rapidement dans le cas de gauche, à une impulsion, puisque l'intensité laser est plus élevée. Néanmoins, la température maximale atteinte ne dépasse pas 4500 K dans ce cas alors qu'elle avoisine 9000 K en surface dans le cas de droite, à deux impulsions. Nous voyons ici qu'imposer un retard avant de délivrer la majeure partie de l'énergie permet ainsi de doubler la valeur de T_i en surface. Il apparaît que la température à 100 nm de profondeur est également supérieure dans le cas de la double-impulsion ce qui tend à montrer que le gain d'énergie déposée ne se limite pas à la surface du matériau.

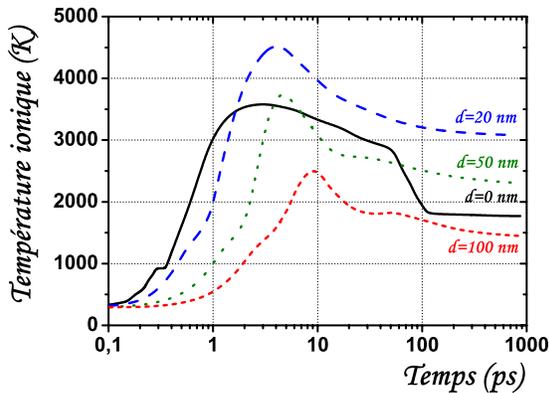


FIG. 9.13 – Evolution de T_i à différentes profondeurs à la suite d'une impulsion de 2.5 J cm^{-2} .

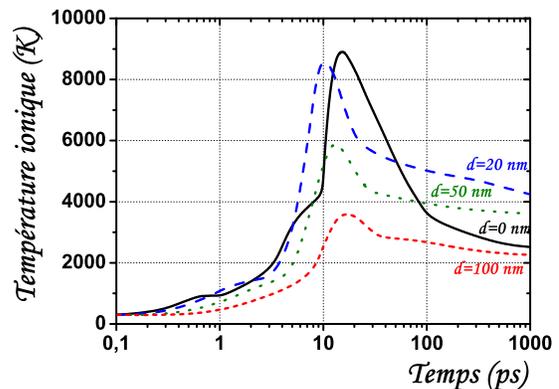


FIG. 9.14 – Evolution de T_i à différentes profondeurs à la suite d'une double-impulsion de 0.5 J cm^{-2} et 2 J cm^{-2} .

De manière identique, nous avons simulé des impulsions dont la fluence (intégrée) était fixée à 3.5 J cm^{-2} . L'évolution temporelle de T_i pour différentes profondeurs dans le métal est reportée dans les deux cas sur les figures (9.15) et (9.16). Le comportement des courbes est similaire à l'exemple précédent. Nous pouvons toutefois remarquer que la température maximale atteinte n'augmente que de 1000 K dans le cas à une impulsion alors qu'elle double dans l'autre

cas, passant de 8000 K à 16000 K avec cette énergie supplémentaire. Un facteur trois est ainsi obtenu sur T_i en surface dans cette configuration entre les deux formes temporelles d'impulsion. Nous en déduisons que si une première impulsion prépare efficacement le matériau à absorber une post-impulsion, alors le chauffage est accentué par rapport au cas d'une impulsion unique.

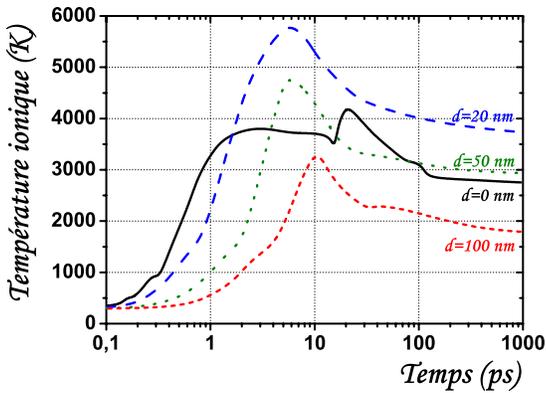


FIG. 9.15 – Evolution de T_i à différentes profondeurs à la suite d'une impulsion de 3.5 J cm^{-2} .

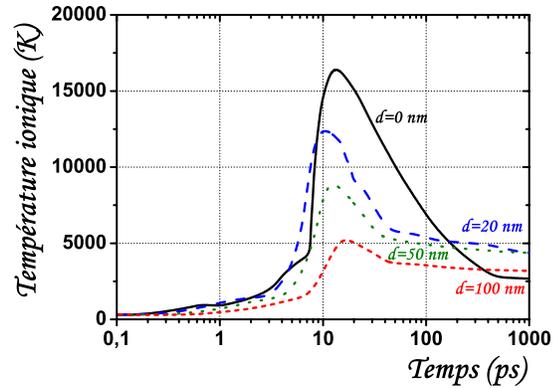


FIG. 9.16 – Evolution de T_i à différentes profondeurs à la suite d'une double-impulsion de 0.5 J cm^{-2} et 3 J cm^{-2} .

L'accentuation du chauffage en surface s'accompagne d'une augmentation de l'énergie en profondeur. Il est donc clair que l'énergie totale absorbée est supérieure lors d'une double-impulsion. Afin de vérifier ceci, nous avons calculé le taux d'énergie absorbée, *i.e.* l'énergie absorbée rapportée à l'énergie incidente délivrée, dans les quatre situations précédentes. Nous avons représenté l'évolution temporelle de ce taux d'absorption sur la figure (9.17).

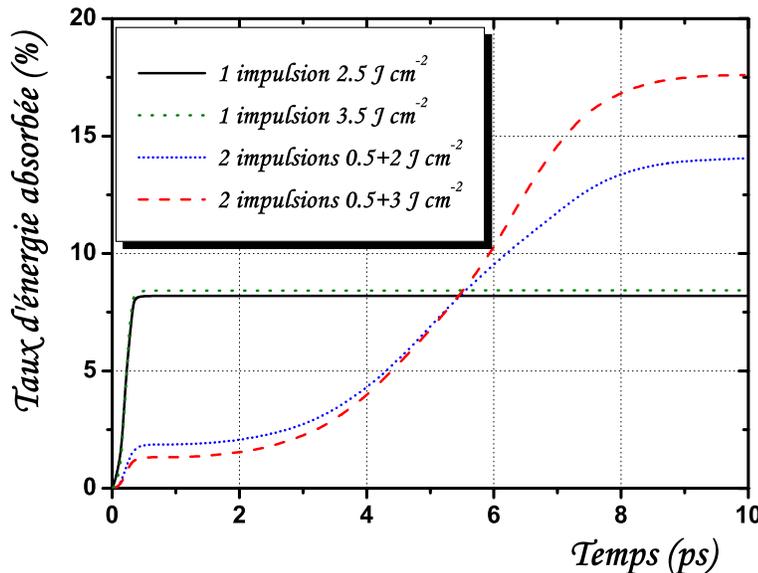


FIG. 9.17 – Proportion de l'énergie absorbée en fonction du temps pour les deux types d'impulsion et pour deux fluences données sur un échantillon d'aluminium.

Des comportements nettement différents sont visibles sur cette figure. Alors que le taux d'énergie absorbée avoisine les 8 % pour les deux cas d'une seule impulsion, il vaut presque 14 % à 2.5 J cm^{-2} et atteint 17.5 % à 3.5 J cm^{-2} . Lors de la post-impulsion, le matériau voit ses propriétés optiques évoluer considérablement ce qui explique ces différences d'absorption. Nous voyons que le cas d'une impulsion unique n'est pas un cas favorable puisque la réflectivité n'a pas le temps d'évoluer et l'énergie absorbée reste la même en proportion, lorsque nous augmentons la fluence. A l'inverse, dans le cas du dédoublement d'impulsion, l'augmentation de la fluence incidente est profitable pour l'absorption de l'énergie. Nous pouvons remarquer que dans le dernier cas, le taux d'énergie absorbée augmente plus fortement lorsque la moitié de la seconde impulsion est absorbée, pour des temps supérieurs au temps de relaxation ($e-ph$), lorsque les électrons ont eu le temps de redistribuer complètement leur énergie gagnée pendant la première impulsion.

Nous avons ainsi mis en évidence les avantages dont nous pouvons bénéficier avec l'utilisation d'une impulsion de forme temporelle adaptée. L'énergie absorbée augmente lorsque le matériau s'échauffe et il est intéressant de laisser l'énergie d'une première impulsion se relaxer, avant d'envoyer une seconde impulsion, d'énergie plus élevée. Le métal est alors conduit dans un état thermodynamique favorable à l'interaction tout au long de l'impulsion. Ce cas de mise en forme temporelle d'impulsion pourra être directement confronté à des résultats d'ablation ou de taux d'émission d'ions et il devrait être comparé à des expériences dédiées qui seront réalisées ultérieurement.

9.2.2 Mise en forme programmable par optique diffractive

Le dispositif expérimental exposé précédemment a pour principal avantage d'être reconfigurable tout en occasionnant des pertes minimales d'énergie. Néanmoins, sa résolution est limitée par l'échantillonnage lié à la matrice de cristaux liquides. Il a également l'inconvénient d'être plus complexe d'utilisation qu'un dispositif passif. L'utilisation de réseaux résonnants pourrait constituer une alternative pour mettre en forme les impulsions ultracourtes. Le dispositif consiste en un guide d'onde plan, dans lequel des modes sont confinés, surmonté d'un réseau de diffraction. Lorsque l'onde rencontre le réseau résonnant, ce dernier introduit un déphasage entre les ondes réfléchies et transmises. En changeant les conditions d'excitation des modes guidés, il est possible de créer des interférences et d'atténuer plus ou moins l'amplitude de l'onde. Ces réseaux résonnants possèdent alors des capacités filtrantes dans le domaine spectral sans qu'il soit pour autant nécessaire de travailler dans l'espace spectral de l'impulsion pour faire de la mise en forme temporelle. En jouant sur la période du réseau de diffraction, il est possible de modifier la forme de l'onde à la sortie du dispositif et donc de créer des double-impulsions d'amplitudes relatives variées [115]. Les profils temporels peuvent être simulés avant d'engager

la phase de réalisation du composant. Une estimation du résultat escompté est du plus haut intérêt au vu des coûts de fabrication de ce type de composant.

Nous avons ainsi été amenés à considérer trois types de double-impulsions d'une durée égale à une picoseconde, correspondant aux impulsions attendues par ce système spécifique. Elles seront comparées à l'impulsion initiale représentée sur la figure (9.18). Chacune des figures (9.18) à (9.21) montrent les quatre formes d'impulsions dont nous allons évaluer les effets respectifs. Elles sont normalisées de manière à ce que le maximum soit égal à l'unité. L'énergie sera ensuite répartie de telle sorte que l'intégrale sur le temps soit égale à l'énergie délivrée par l'impulsion d'origine. Nous négligeons ainsi toute perte induite par le passage dans le cristal. La première, l'impulsion d'origine, est de forme gaussienne et a une durée égale à 130 fs (FWHM). La seconde correspond à un dédoublement de cette impulsion, où les deux pics ont une intensité maximale similaire. Ils n'ont pas exactement la même forme puisque la première demi-impulsion présente un front de montée plus lent que la seconde. Néanmoins, nous pouvons supposer que les deux pics induiront approximativement le même apport d'énergie. La troisième impulsion, sur la figure (9.20), présente une impulsion principale dont le maximum est atteint au bout d'environ 500 fs. Celle-ci est suivie d'une post-impulsion, contenant une plus faible portion d'énergie, centrée autour de 750 fs. Enfin, la dernière impulsion, figure (9.21), est en quelque sorte la symétrique temporelle de la précédente puisque l'impulsion principale, centrée à 750 fs, est précédée d'une pré-impulsion, de plus faible énergie. Là encore, le front de montée de la pré-impulsion est plus lent que l'impulsion principale, et elle admet son maximum à environ 500 fs.

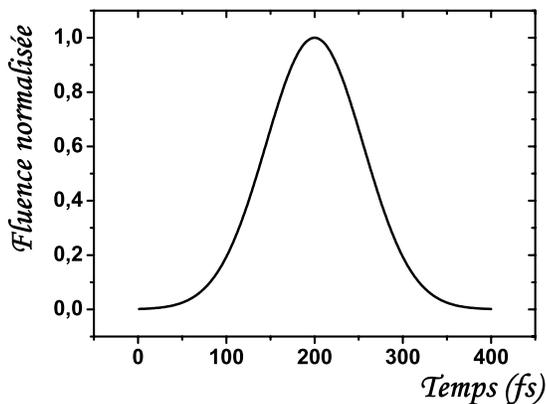


FIG. 9.18 – Gaussienne ($\tau_{FWHM} = 130$ fs).

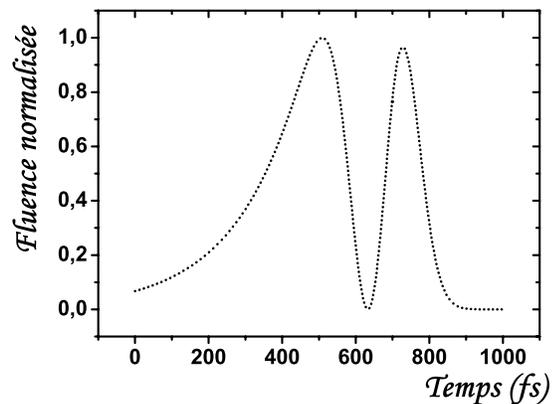


FIG. 9.19 – Dédoublement égal.

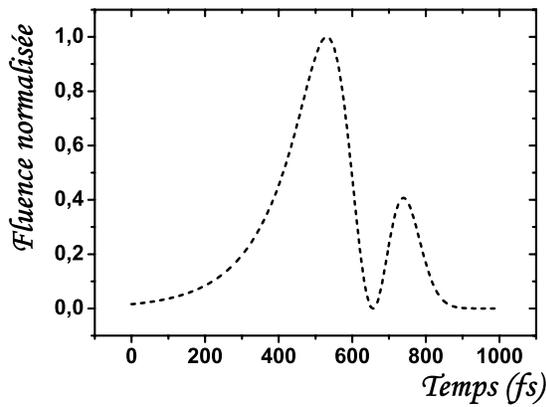


FIG. 9.20 – Post-impulsion.

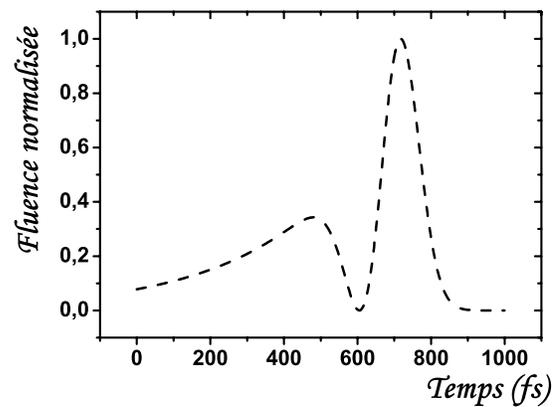


FIG. 9.21 – Pré-impulsion.

Nous avons vu au début de ce chapitre, que les collisions intrabandes de type électron-électron dans le solide ainsi que les collisions électron-phonon puis électron-ion dans le réseau cristallin chauffé, pouvaient être dopées par une double-impulsion de forme appropriée. En effet, la première impulsion engendre un fort déséquilibre thermique du métal en augmentant de manière conséquente la température électronique en surface. Il en résulte une forte hausse des fréquences de collisions ($e-e$) et ($e-i$) dans le système qui amène les propriétés optiques du métal dans un état favorable à l'absorption des photons incidents. Ainsi, la baisse de la réflectivité provoque une augmentation de l'énergie absorbée. Pour distinguer l'effet des différents types d'impulsion, nous avons comparé l'évolution de l'énergie absorbée par l'échantillon. Chacune des impulsions porte le système dans un état de déséquilibre plus ou moins avancé au cours de l'irradiation, ce qui est favorable, ou non, à l'absorption du reste de l'impulsion. Au terme de l'irradiation laser, nous comparerons les énergies totales absorbées pour voir laquelle des quatre impulsions est la plus efficace pour l'absorption d'énergie. Puisque nous avons montré au cours du *chapitre 7* que les transitions interbandes jouaient un rôle primordial dans un matériau comme l'aluminium, nous présenterons des résultats pour ce métal, dont la longueur d'onde favorise ce type de transitions. A titre de comparaison, nous présenterons également des résultats pour le cuivre, dont les propriétés optiques sont dominées par les transitions intrabandes. Afin de pouvoir observer des différences significatives dans le comportement des propriétés de ces deux métaux, nous nous sommes placés dans des cas différents de fluence incidente. Ainsi, celle-ci a été fixée à 5 J cm^{-2} pour l'aluminium et à 15 J cm^{-2} pour le cuivre. Pour des fluences plus faibles, la mise en forme de l'impulsion n'est pas intéressante pour le cuivre, tout simplement parce que l'augmentation de la durée d'impulsion, qui passe de 130 fs à 1 ps, diminue l'énergie absorbée. Notons également que nous n'avons pas jugé pertinent d'étudier les effets relatifs à un jeu d'impulsions d'une énergie plus faible puisque les énergies absorbées présentent de trop faibles différences de comportements entre les diverses impulsions.

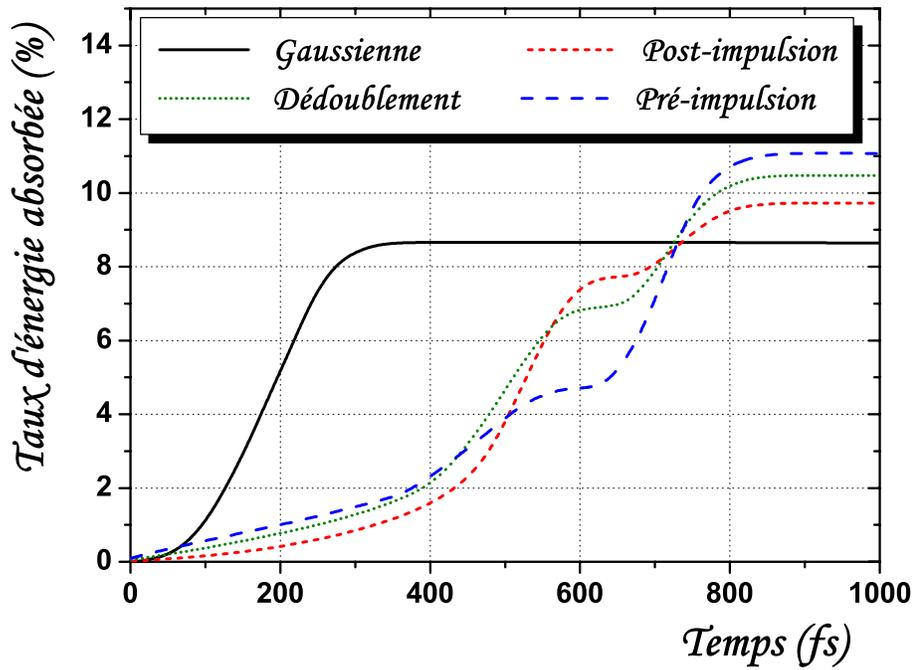


FIG. 9.22 – Proportion de l'énergie absorbée en fonction du temps pour les différents types d'impulsion sur un échantillon d'aluminium. La fluence de l'impulsion était fixée à 5 J cm^{-2} .

Sur la figure (9.22), nous avons représenté le taux d'énergie absorbée, *i.e.* l'énergie absorbée rapportée à l'énergie incidente délivrée, en fonction du temps. L'impulsion gaussienne, servant de référence, montre une plus faible proportion d'énergie totale absorbée, dont le maximum est bien sûr atteint plus rapidement. Il apparaît qu'au terme de la première impulsion, autour de 600 fs, l'énergie absorbée est supérieure dans le cas de la post-impulsion à celle du dédoublement, elle-même supérieure à celle relative à la pré-impulsion. Cet ordre s'explique facilement puisqu'il respecte la proportion de l'énergie incidente délivrée à 600 fs. Par contre, la courbe d'absorption de la pré-impulsion dépasse 11 % de l'énergie incidente au terme de l'impulsion alors que celle du dédoublement atteint 10.5 % et celle de la post-impulsion est inférieure à 10 %. Ceci met en évidence le fait que la pré-impulsion est un cas favorable à l'absorption de l'énergie. En effet, celle-ci est suffisante pour chauffer le réseau cristallin de manière à inhiber les transitions interbandes qui ont tendance à diminuer l'énergie absorbée. En provoquant la fusion du métal, elle interdit même ce type de transition et l'impulsion principale est alors plus efficacement absorbée par l'intermédiaire des collisions électron-ion. En revanche, dans les deux autres cas et de surcroît dans le cas de la post-impulsion, l'impulsion principale contenant la majeure partie de l'énergie, subit une plus forte réflexion à la surface en raison de l'augmentation de la réflectivité due aux transitions interbandes, elles-mêmes accrues par l'augmentation de la température électronique.

Cette analyse du comportement optique de l'aluminium rejoint donc ici les conclusions auxquelles nous avons abouti au paragraphe précédent, en ce sens qu'une pré-impulsion pouvait induire un état de surface du métal favorable à l'absorption de l'impulsion consécutive.

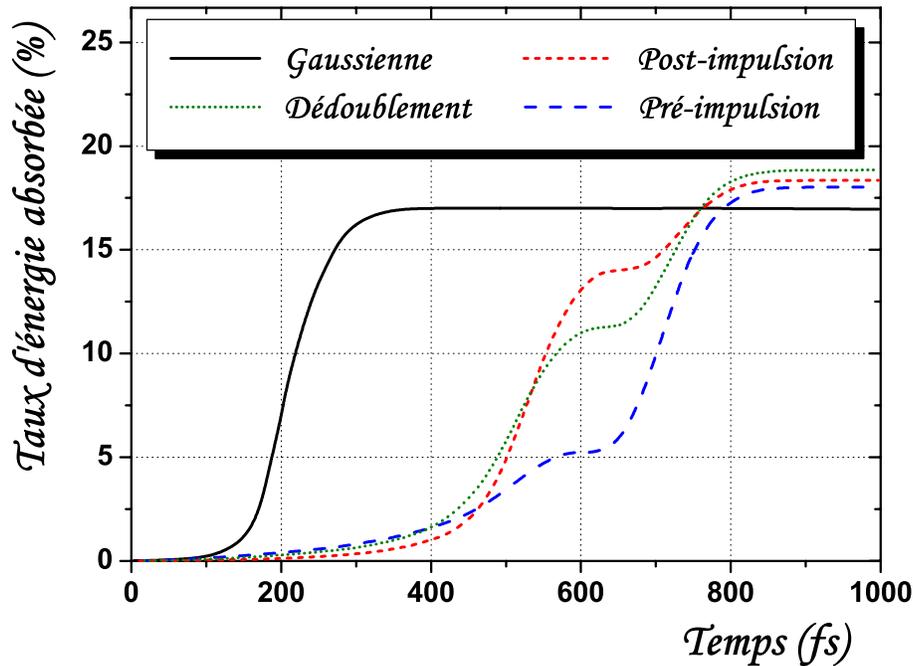
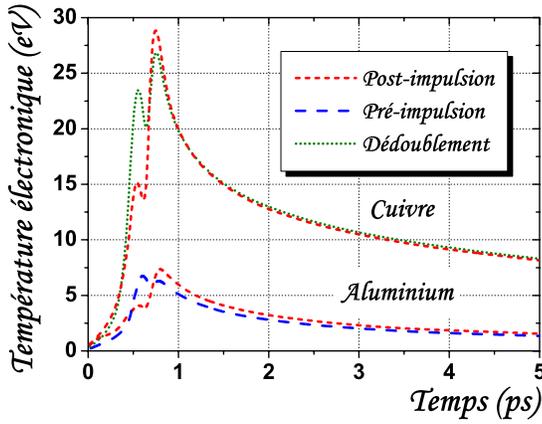
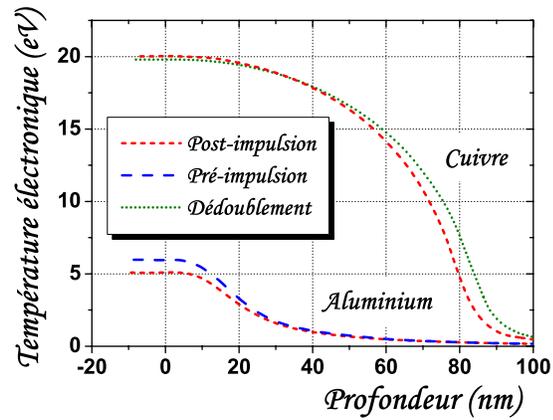


FIG. 9.23 – Proportion de l'énergie absorbée en fonction du temps pour les différents types d'impulsion sur un échantillon de cuivre. La fluence de l'impulsion était fixée à 15 J cm^{-2} .

Une étude similaire à celle de l'aluminium a été réalisée dans le cas d'une cible en cuivre, dont les résultats sont reportés sur la figure (9.23). Là encore, l'énergie absorbée au stade intermédiaire, entre les deux impulsions à 600 fs, respecte les différents profils temporels de répartition de l'énergie. La différence d'absorption entre chacune des impulsions est ici moins marquée. La fluence incidente étant relativement élevée, nous avons pu observer l'apparition d'une fine couche de métal en fusion à la surface du matériau au terme de la demi-impulsion, après 600 fs. Ainsi, la fin de l'impulsion est mieux absorbée. Le cas du dédoublement de l'impulsion semble être la forme la plus favorable dans le cas du cuivre. Effectivement, elle induit une plus forte augmentation de T_i ce qui a pour effet d'accroître la fréquence de collisions ($e-i$). Dans le cadre de la théorie des électrons libres, ceci implique une diminution de la conductivité électrique et la réflectivité est ainsi abaissée à l'instant où l'impulsion principale arrive sur la surface. Dans le cas de la post-impulsion, l'impulsion principale rencontre le milieu plus froid, ce qui est moins propice à l'absorption de l'énergie. La pré-impulsion constitue ici le cas intermédiaire.


 FIG. 9.24 – Evolution de T_e en surface.

 FIG. 9.25 – Répartition de T_e à 1 ps.

Afin d'affiner cette étude, nous avons analysé les profils temporels et spatiaux de la température électronique. En effet, c'est elle qui est responsable de l'absorption de l'énergie par l'intermédiaire des collisions ($e-e$) au début de l'impulsion. Ensuite les collisions ($e-ph$) et ($e-i$) régissent la répartition de l'énergie dans le milieu. La température électronique peut donc nous fournir des informations supplémentaires sur l'effet des différentes impulsions sur le degré de chauffage, en surface ainsi qu'en profondeur, pour des études d'endommagement. Nous avons comparé, pour chacun des deux matériaux, les températures électroniques du cas le plus favorable et du cas le moins favorable. Sur la figure (9.24), nous avons représenté l'évolution temporelle de T_e à la surface des échantillons. Dans le cas du cuivre, les courbes correspondant aux deux types d'impulsions affichent rapidement des températures similaires. Dans l'aluminium par contre, les courbes ne semblent pas se rejoindre exactement, ce qui tend à montrer que l'énergie déposée sur le réseau cristallin est plus importante, au moins en surface, dans le cas de la pré-impulsion pour ce métal. Nous avons ensuite comparé les profils de T_e pour ces deux matériaux sur la figure (9.25). Nous nous sommes placés immédiatement en fin d'impulsion, à 1 ps, où le déséquilibre ($e-i$) est maximal. La répartition spatiale de T_e diffère en profondeur dans le cuivre pour les deux types d'impulsion. Même s'il nous est impossible de négliger la diffusion précédant la relaxation complète de l'énergie électronique sur les ions du cristal, nous remarquons que la post-impulsion a tendance à chauffer le solide plus en profondeur que le dédoublement de l'impulsion. L'énergie supplémentaire absorbée dans le premier cas est ainsi distribuée dans la profondeur du matériau. Au contraire, dans le cas de l'aluminium, l'écart entre la température électronique induite par la pré-impulsion et celle induite par la post-impulsion est discernable uniquement à la surface du matériau. Au-delà de 20 nm, nous n'observons plus de différence notable entre les deux températures. Nous en déduisons que la matière va suivre un comportement thermodynamique similaire en profondeur.

En conclusion, cette modification de la dynamique électronique durant l'impulsion semble préférentiellement induire des variations de T_e en surface dans l'aluminium et en profondeur pour le cuivre. Nous avons remarqué une augmentation de 5 % du taux d'ablation par rapport

à l'impulsion gaussienne d'origine dans le cas de l'aluminium et jusqu'à 8 % pour le cuivre où la pénétration de l'énergie en profondeur constitue un cas favorable. Les deux matériaux sont néanmoins difficilement comparables puisque nous n'avons pas utilisé la même fluence laser dans les deux cas. Des effets liés à la différence d'énergie absorbée sont apparus lors de la transformation solide-liquide de la surface du matériau. Ceci nous a contraint à étudier des fluences relativement élevées pour que la transformation ait lieu dans une échelle de temps inférieure à une picoseconde. Par rapport à l'étude effectuée dans le paragraphe précédant, lié à la mise en forme par valve optique sur une échelle de temps plus importante, nous observons un comportement qualitativement similaire mais l'intérêt peut résider ici dans le fait que ce système privilégie l'absorption d'impulsions de fluences plus importantes.

Ce dernier chapitre a été l'occasion de prolonger l'étude de l'évolution des propriétés optiques en l'appliquant au cas de la mise en forme temporelle d'impulsions ultracourtes. Cette application découle directement de la capacité du modèle à décrire la variation de l'absorption optique lors des changements de comportement thermodynamique de la matière. Dans un premier temps, différents profils de double-impulsion ont été envisagés, afin de dégager les principaux régimes d'absorption. Le cas le plus favorable s'est avéré être constitué d'une impulsion primaire créant un liquide en surface du métal, sans toutefois atteindre la vaporisation afin de minimiser la détente. La couche liquide ainsi produite possède les caractéristiques optiques favorables à une absorption efficace de la seconde partie de l'impulsion. Nous avons alors mis en évidence le fait que pour des impulsions d'énergie modérée, le retard optimal entre les deux pics de l'impulsion coïncidait avec le temps de relaxation ($e-ph$). Nous nous sommes ensuite intéressés à la simulation d'impulsions dont les profils précisément définis correspondent à ceux obtenus lors d'expériences de mise en forme temporelle d'impulsion. Dans ce cadre, les résultats directs pourront sans doute être prochainement confrontés aux données issues de ces expériences spécifiques.

Conclusion générale et perspectives

En réponse au champ laser, les électrons du milieu sont les premiers acteurs de l'interaction. Le temps de relaxation de l'énergie électronique vers les ions du cristal étant typiquement plus long que la durée de l'impulsion laser, nous avons montré que la dynamique électronique jouait un rôle crucial dans l'évolution des propriétés optiques, thermiques, hydrodynamiques et mécaniques du milieu. Le développement de modèles adaptés à cette dynamique s'est avéré nécessaire pour la description et la compréhension des mécanismes conduisant à l'ablation. Ainsi les propriétés thermodynamiques et hydrodynamiques associées à la population électronique ont été découplées de celles du cristal ionique. Un modèle à deux températures nous a permis de décrire la diffusion de l'énergie déposée ainsi que son transfert sur les ions du métal. Les propriétés thermodynamiques du métal, liées par des équations d'état multiphases permettant de décrire la transition de l'état solide à plasma, se sont vues adjoindre une équation d'état électronique que nous avons construite sur la base du modèle de Fermi.

Nous avons étendu notre étude en insérant un déséquilibre en pressions à l'hydrodynamique du système. De plus, un modèle mécanique adapté aux fortes déformations a été introduit dans DELPOR pour prendre en compte la dépendance en température et en pression du module de contrainte. Les effets induits par le découplage thermique sur la mise en mouvement du système sont ainsi précisément décrits. Nous avons alors pu mettre en évidence l'importance de la contribution électronique sur la formation du choc dans la cible. Nous avons également constaté que la transition solide-plasma s'effectuait dans des conditions non conventionnelles en empruntant des chemins thermodynamiques exotiques, liés aux intenses pressions engendrées. Ceci nous a permis de définir un critère d'ablation résultant de l'impulsion laser. La confrontation d'un taux d'ablation simulé avec des résultats expérimentaux dédiés dans le cuivre et l'aluminium s'est montrée très satisfaisante. Nous avons ainsi pu dégager les propriétés optimales de l'impulsion afin d'améliorer l'efficacité de l'ablation.

D'autre part, le transfert de l'énergie électromagnétique vers les électrons du milieu a nécessité une prise en compte du comportement collectif de la dynamique électronique. L'absorption optique a été calculée par l'intermédiaire de l'équation de Helmholtz. Une conductivité électrique hors d'équilibre a été introduite pour tenir compte des effets induits par l'accroissement de la fréquence de collisions au sein du gaz d'électrons. Pour cela, nous avons dû dissocier les interactions autorisant l'absorption des photons incidents. Les indices optiques dans le milieu solide ont alors été enrichis d'une dépendance en température et densité électronique. Dans le cas plus particulier de l'aluminium, nous avons également inséré une dépendance des transitions interbandes en température électronique. Le comportement du gaz de fermions s'est alors fortement manifesté à travers les propriétés optiques telles que la réflectivité ou la transmittivité sur une échelle de temps inférieure au temps de relaxation électron-phonon. Plusieurs types d'expériences impliquant la variation des propriétés optiques lors de la transition solide-plasma ont pu être reproduites et ont validé ainsi notre approche.

Expérimentalement, différents dispositifs pompe-sonde ont récemment émergé permettant d'avoir une résolution temporelle des propriétés optiques associées au déséquilibre électronique. Une comparaison des résultats nous a permis d'analyser la déviation des propriétés lors du déséquilibre par rapport au cas standard, à l'équilibre. Ainsi, il a été possible d'identifier le rôle des processus hors d'équilibre à l'origine de la relaxation d'énergie dans le milieu. Nous avons ainsi mis en évidence l'intérêt d'intégrer des processus originaux de transports électroniques dans les plasmas denses pour reproduire les diagnostics d'expériences. Cette intégration a également présenté un intérêt majeur dans les expériences utilisant une mise en forme temporelle de faisceau pour optimiser l'ablation. Nous avons dégagé la corrélation existant entre l'évolution de la réflectivité induite par une impulsion laser et le délai qu'il convient d'imposer avant une seconde impulsion afin d'augmenter son efficacité. Enfin, deux applications relatives au dédoublement d'impulsions ultracourtes ont été présentées. Les résultats numériques seront prochainement confrontés aux résultats expérimentaux afin de justifier de manière théorique le choix des formes temporelles imposées dans les expériences.

Pour l'établissement de ces modèles, plusieurs hypothèses fortes ont été nécessaires et notamment la notion de température électronique. Comme nous l'avons déjà évoqué au cours du *chapitre 2*, elle est sujette à discussion sur les temps ultracourts. Les modèles qui relient les propriétés macroscopiques aux processus de transport sont ainsi régulièrement mis en défaut. Par exemple, certains auteurs ont proposé une limite cinétique au flux de chaleur [78]. Seule une étude approfondie de l'équation de Boltzmann contenant les processus de collisions ($e-e$) et ($e-ph$) pourrait permettre de discerner différents régimes collisionnels. Malheureusement, même sous des approximations judicieuses, apporter une solution à cette équation complexe n'est pour l'instant pas envisageable.

Les propriétés optiques découlent directement des processus collisionnels lors de la relaxation du système. Afin de nous soustraire de l'interpolation grossière que nous avons dû effectuer

entre les différents régimes, il serait souhaitable de bénéficier de nouvelles données pour dépasser cette approximation. Les méthodes *ab initio* de dynamique moléculaire, basées sur la théorie fonctionnelle de la densité, se sont déjà révélées être particulièrement adaptées pour reproduire la fusion ultrarapide des semi-conducteurs [135]. Grâce à cette méthode et pour ce type de matériau, la conductivité électrique a également été étudiée par l'intermédiaire de la formule de Kubo-Greenwood. Nous avons entrepris une telle étude dans le cas de l'aluminium à l'aide d'un code Car Parinello de Dynamique Moléculaire (CPMD) mais les premiers essais n'ont pas été fructueux. Des efforts dans ce sens seraient toutefois très intéressants pour décrire correctement l'évolution des indices optiques.

Notre approche reste également confinée dans le cadre imposé par notre traitement fluide. Si des chemins thermodynamiques exotiques peuvent être envisagés, les états atteints par la matière sont néanmoins dictés par l'équation d'état utilisée. Celle-ci nous permet d'accéder le plus fidèlement possible aux données thermodynamiques à l'équilibre connues mais elle n'autorise pas d'écart pour des conditions plus inhabituelles. En effet, le déséquilibre thermique modifie sans doute l'écrantage auquel est fortement sensible la cohésion du réseau cristallin à travers l'équilibre des forces attractive et répulsive. Un traitement de dynamique moléculaire pourrait permettre une plus grande flexibilité thermodynamique en rendant compte de l'évolution du champ moyen coulombien. Des situations thermodynamiques extrêmes pourraient alors émerger et de nouveaux mécanismes d'endommagement seraient susceptibles d'être dégagés.

Aux flux intermédiaires, l'interaction laser-matière couvre un large éventail de phénomènes physiques et son étude théorique a dû se munir de modèles pluridisciplinaires. L'enjeu pour nous était d'inscrire ce mode d'interaction dans un contexte théorique adapté afin de simuler les effets engendrés par une excitation électromagnétique ultracourte et d'interpréter ainsi les résultats d'expériences. L'originalité de ce travail se situe dans la connexion réalisée lors de la transition de l'état dégénérée de la matière condensée vers un régime plasma chaud non-dégénéré. Appartenant à l'origine à des théories physiques distinctes, ces modèles se sont développés indépendamment et les concepts qui permettraient de les unifier de manière claire manquent encore. Néanmoins, en réunissant les données et les comportements connus dans l'un et l'autre de ces domaines, nous avons pu décrire les propriétés de la matière à l'interface entre la physique du solide et celle des plasmas. Nous avons ainsi mis en évidence que leur réunion était très intéressante d'un point de vue fondamental mais également appliqué puisque les résultats obtenus proposent une interprétation ainsi qu'une optimisation des expériences d'interaction laser ultrabref-solide métallique.

 Résolution analytique de l'équation de Helmholtz

Dans cette première annexe, nous allons formuler les solutions analytiques des équations précédemment établies dans chacune des mailles du milieu modélisé. L'empilement de N mailles homogènes est schématisé ci-dessous.

A.1 Formulation analytique

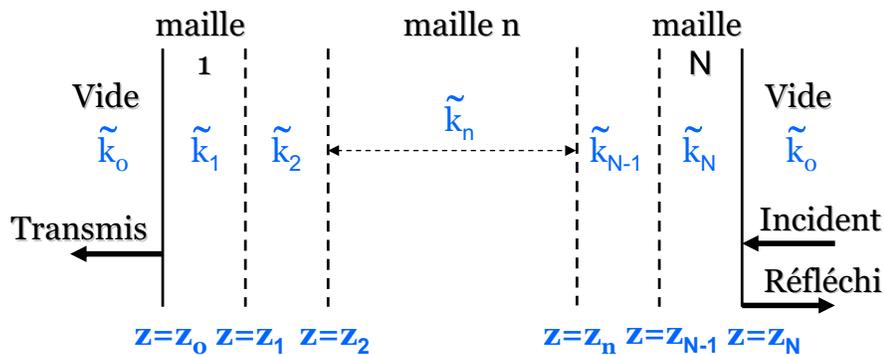


FIG. A.1 – Schéma de l'empilement de maille.

Dans le vide représenté à la gauche de l'empilement, il n'existe qu'une seule onde se propageant vers les valeurs négatives de z . Comme nous l'avons vu dans le *chapitre 1*, cette onde

varie en $\exp(ik_0 z \cos \vartheta)$ et le champ électrique s'écrit :

$$\begin{cases} \mathcal{E}_x(x, z) = a_0 \exp [ik_0 \cos \vartheta (z - z_0)] \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \\ \mathcal{E}_y(x, z) = c_0 \exp [ik_0 \cos \vartheta (z - z_0)] \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \\ \mathcal{E}_z(x, z) = -a_0 \tan \vartheta \exp [ik_0 \cos \vartheta (z - z_0)] \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \end{cases}$$

où a_0 et c_0 sont des constantes complexes qui seront déterminées ultérieurement par les relations de continuité aux interfaces. Ces dernières s'expriment en fonction des dérivées du champ \mathcal{E} introduites précédemment :

$$\begin{cases} \frac{\partial \mathcal{E}_x}{\partial z} - \frac{\partial \mathcal{E}_z}{\partial x} = a_0 \frac{ik_0}{\cos \vartheta} \exp [ik_0 \cos \vartheta (z - z_0)] \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \\ \frac{\partial \mathcal{E}_y}{\partial z} = c_0 ik_0 \cos \vartheta \exp [ik_0 \cos \vartheta (z - z_0)] \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \end{cases}$$

Dans une maille n située à l'abscisse z dans le milieu stratifié ($z_{n-1} < z < z_n$), le vecteur d'onde généralisé prend la valeur \tilde{k}_n et le champ électrique est de la forme (1.14) :

$$\begin{cases} \mathcal{E}_x(x, z) = a_0 \left\{ \alpha_n \exp [i\tilde{k}(z - z_{n-1})] + \beta_n \exp [-i\tilde{k}_n(z - z_{n-1})] \right\} \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \\ \mathcal{E}_y(x, z) = c_0 \left\{ \gamma_n \exp [i\tilde{k}(z - z_{n-1})] + \delta_n \exp [-i\tilde{k}_n(z - z_{n-1})] \right\} \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \\ \mathcal{E}_z(x, z) = -\frac{k_0 \sin \vartheta}{\tilde{k}} a_0 \left\{ \alpha_n \exp [i\tilde{k}(z - z_{n-1})] + \beta_n \exp [-i\tilde{k}_n(z - z_{n-1})] \right\} \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \end{cases}$$

où $\alpha_n, \beta_n, \gamma_n, \delta_n$ sont des constantes complexes qui seront déterminées à partir des conditions aux limites. Leurs dérivées s'en déduisent facilement :

$$\begin{cases} \frac{\partial \mathcal{E}_x}{\partial z} - \frac{\partial \mathcal{E}_z}{\partial x} = i \left[\tilde{k}_n + \frac{(k_0 \sin \vartheta)^2}{\tilde{k}_n} \right] a_0 \left\{ \alpha_n \exp [i\tilde{k}_{n-1}(z - z_{n-1})] \right. \\ \quad \left. - \beta_n \exp [-i\tilde{k}_{n-1}(z - z_{n-1})] \right\} \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \\ \frac{\partial \mathcal{E}_y}{\partial z} = c_0 i\tilde{k}_n \left\{ \gamma_n \exp [i\tilde{k}_{n-1}(z - z_{n-1})] - \delta_n \exp [-i\tilde{k}_{n-1}(z - z_{n-1})] \right\} \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \end{cases}$$

Les relations de continuité en $z = z_0$ fournissent les relations suivantes :

$$\mathcal{E}_x \text{ continu} \quad \Longrightarrow \quad \alpha_1 + \beta_1 = 1$$

$$\frac{\partial \mathcal{E}_x}{\partial z} - \frac{\partial \mathcal{E}_z}{\partial x} \text{ continu} \quad \Longrightarrow \quad \left[\tilde{k}_1 + \frac{(k_0 \sin \vartheta)^2}{\tilde{k}_1} \right] (\alpha_1 - \beta_1) = \frac{k_0}{\cos \vartheta}$$

$$\begin{aligned}\mathcal{E}_y \text{ continu} &\implies \gamma_1 + \delta_1 = 1 \\ \frac{\partial \mathcal{E}_y}{\partial z} \text{ continu} &\implies \tilde{k}_1(\gamma_1 - \delta_1) = k_0 \cos \vartheta\end{aligned}$$

Ces relations permettent de déterminer sans ambiguïté α_1 , β_1 , γ_1 et δ_1 . De même, les relations de continuité en $z = z_{n-1}$ fournissent les relations suivantes pour la détermination des coefficients dans la maille n :

$$\begin{aligned}\mathcal{E}_x \text{ continu} &\implies \alpha_n + \beta_n = \alpha_{n-1} \exp \left[i\tilde{k}_{n-1}(z_{n-2} - z_{n-1}) \right] + \beta_{n-1} \exp \left[i\tilde{k}_{n-1}(z_{n-2} - z_{n-1}) \right] \\ \frac{\partial \mathcal{E}_x}{\partial z} - \frac{\partial \mathcal{E}_z}{\partial x} \text{ continu} &\implies \left[\tilde{k}_n + \frac{(\tilde{k}_{n-2} \sin \vartheta)^2}{\tilde{k}_n} \right] (\alpha_n - \beta_n) = \left[\tilde{k}_{n-1} + \frac{(\tilde{k}_{n-2} \sin \vartheta)^2}{\tilde{k}_{n-1}} \right] \times \\ &\quad \left\{ \alpha_{n-1} \exp \left[i\tilde{k}_{n-1}(z_{n-2} - z_{n-1}) \right] - \beta_{n-1} \exp \left[-i\tilde{k}_{n-1}(z_{n-2} - z_{n-1}) \right] \right\} \\ \mathcal{E}_y \text{ continu} &\implies \gamma_n + \delta_n = \gamma_{n-1} \exp \left[i\tilde{k}_{n-1}(z_{n-2} - z_{n-1}) \right] + \delta_{n-1} \exp \left[-i\tilde{k}_{n-1}(z_{n-2} - z_{n-1}) \right] \\ \frac{\partial \mathcal{E}_y}{\partial z} \text{ continu} &\implies \tilde{k}_n(\gamma_n - \delta_n) = \tilde{k}_{n-1} \left\{ \gamma_{n-1} \exp \left[i\tilde{k}_{n-1}(z_{n-2} - z_{n-1}) \right] - \delta_{n-1} \exp \left[-i\tilde{k}_{n-1}(z_{n-2} - z_{n-1}) \right] \right\}\end{aligned}$$

Nous tirons des relations précédentes la valeur des coefficients α_n , β_n , γ_n et δ_n de maille en maille, jusqu'au calcul du champ en $z = z_N$ à l'interface avec le vide de droite.

A.2 Raccordement à l'impulsion incidente

Dans la dernière maille indicée N du milieu absorbant, jouxtant l'interface avec le vide de droite sur la figure A.1), le champ électrique et ses dérivées s'expriment sous la forme :

$$\begin{cases} \mathcal{E}_x = a_0 \left\{ \alpha_N \exp \left[i\tilde{k}_N(z - z_N) \right] + \beta_N \exp \left[-i\tilde{k}_N(z - z_N) \right] \right\} \exp(ik_0x \sin \vartheta) \\ \mathcal{E}_y = c_0 \left\{ \gamma_N \exp \left[i\tilde{k}_N(z - z_N) \right] + \delta_N \exp \left[-i\tilde{k}_N(z - z_N) \right] \right\} \exp(ik_0x \sin \vartheta) \\ \mathcal{E}_z = -\frac{k_0 \sin \vartheta}{\tilde{k}} a_0 \left\{ \alpha_N \exp \left[i\tilde{k}_N(z - z_N) \right] + \beta_N \exp \left[-i\tilde{k}_N(z - z_N) \right] \right\} \exp(ik_0x \sin \vartheta) \end{cases}$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \mathcal{E}_x}{\partial z} - \frac{\partial \mathcal{E}_z}{\partial x} = i \left[\tilde{k}_N + \frac{(k_0 \sin \vartheta)^2}{\tilde{k}_N} \right] a_0 \times \\ \quad \left\{ \alpha_N \exp \left[i \tilde{k}_N (z - z_N) \right] - \beta_N \exp \left[-i \tilde{k}_N (z - z_N) \right] \right\} \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \\ \frac{\partial \mathcal{E}_y}{\partial z} = c_0 i \tilde{k}_N \left\{ \gamma_N \exp \left[ik_N (z - z_N) \right] - \delta_N \exp \left[-ik_N (z - z_N) \right] \right\} \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \end{array} \right.$$

A la droite de l'interface en $z = z_N$, dans le vide, le champ électrique s'écrit comme la somme des champs incidents et réfléchis. Nous posons $r_p = \frac{\mathcal{E}_r^p}{\mathcal{E}_i^p}$ et $r_s = \frac{\mathcal{E}_r^s}{\mathcal{E}_i^s}$:

$$\vec{\mathcal{E}}_{i+r} = \left(\begin{array}{l} \mathcal{E}_i^p \cos \vartheta \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \left\{ \exp \left[i(k_0 z \cos \vartheta + \phi_i^p) \right] - r_p \exp \left[i(-k_0 z \cos \vartheta + \phi_r^p) \right] \right\} \\ \mathcal{E}_i^s \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \left\{ \exp \left[i(k_0 z \cos \vartheta + \phi_i^s) \right] + r_s \exp \left[i(-k_0 z \cos \vartheta + \phi_r^s) \right] \right\} \\ - \mathcal{E}_i^p \sin \vartheta \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \left\{ \exp \left[i(k_0 z \cos \vartheta + \phi_i^p) \right] + r_p \exp \left[i(-k_0 z \cos \vartheta + \phi_r^p) \right] \right\} \end{array} \right) \quad (\text{A.1})$$

Et les dérivées du champ électrique prennent les valeurs :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \mathcal{E}_x}{\partial z} - \frac{\partial \mathcal{E}_z}{\partial x} = ik_0 \mathcal{E}_i^p \cos \vartheta \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \left\{ \exp \left[i(k_0 z \cos \vartheta + \phi_i^p) \right] + r_p \exp \left[i(-k_0 z \cos \vartheta + \phi_r^p) \right] \right\} \\ \frac{\partial \mathcal{E}_y}{\partial z} = ik_0 \mathcal{E}_i^s \cos \vartheta \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \left\{ \exp \left[i(k_0 z \cos \vartheta + \phi_i^s) \right] - r_s \exp \left[i(-k_0 z \cos \vartheta + \phi_r^s) \right] \right\} \end{array} \right.$$

Les relations de continuité en $z = z_N$, sur l'interface avec le vide, amènent, pour l'onde polarisée « p », aux équations linéaires couplées :

$$\left\{ \begin{array}{l} a_0 \left\{ \alpha_N \exp \left[i \tilde{k}_N z_N \right] + \beta_N \exp \left[-i \tilde{k}_N z_N \right] \right\} = \\ \quad \mathcal{E}_i^p \cos \vartheta \left\{ \exp \left[i(k_0 z_N \cos \vartheta + \phi_i^p) \right] - r_p \exp \left[i(-k_0 z_N \cos \vartheta + \phi_r^p) \right] \right\} \\ \left[\tilde{k}_N + \frac{(k_0 \sin \vartheta)^2}{\tilde{k}_N} \right] a_0 \left\{ \alpha_N \exp \left[i \tilde{k}_N z_N \right] - \beta_N \exp \left[-i \tilde{k}_N z_N \right] \right\} = \\ \quad k_0 \mathcal{E}_i^p \left\{ \exp \left[i(k_0 z_N \cos \vartheta + \phi_i^p) \right] + r_p \exp \left[i(-k_0 z_N \cos \vartheta + \phi_r^p) \right] \right\} \end{array} \right. \quad (\text{A.2})$$

Les équations ci-dessus permettent de déterminer les dernières inconnues que sont a_0 et $r_p \exp(i\phi_r^p)$. De même pour l'onde « s », les relations suivantes s'imposent :

$$\left\{ \begin{array}{l} c_0 \left\{ \gamma_N \exp \left[i \tilde{k}_N (z_{N-1} - z_N) \right] + \delta_N \exp \left[-i \tilde{k}_N (z_{N-1} - z_N) \right] \right\} = \\ \quad \mathcal{E}_i^s \left\{ \exp \left[i (k_0 z_N \cos \vartheta + \phi_i^s) \right] + r_s \exp \left[i (-k_0 z_N \cos \vartheta + \phi_r^s) \right] \right\} \\ \tilde{k}_N c_0 \left\{ \gamma_N \exp \left[i \tilde{k}_N (z_{N-1} - z_N) \right] - \delta_N \exp \left[-i \tilde{k}_N (z_{N-1} - z_N) \right] \right\} = \\ \quad k_0 \mathcal{E}_i^s \cos \vartheta \left\{ \exp \left[i (k_0 z_N \cos \vartheta + \phi_i^s) \right] + r_s \exp \left[i (-k_0 z_N \cos \vartheta - \phi_r^s) \right] \right\} \end{array} \right. \quad (\text{A.3})$$

L'indétermination sur les variables c_0 et $r_s \exp(i\phi_r^s)$ est ainsi levée. De par l'expression du champ transmis dans le vide (1.12) et en posant $t_p = \frac{\mathcal{E}_t^p}{\mathcal{E}_i^p}$ et $t_s = \frac{\mathcal{E}_t^s}{\mathcal{E}_i^s}$:

$$\vec{\mathcal{E}}_t = \begin{pmatrix} t_p \mathcal{E}_t^p \cos \vartheta \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \exp[i(k_0 z \cos \vartheta + \phi_t^p)] \\ t_s \mathcal{E}_t^s \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \exp[i(k_0 z \cos \vartheta + \phi_t^s)] \\ - t_p \mathcal{E}_t^p \sin \vartheta \exp(ik_0 x \sin \vartheta) \exp[i(k_0 z \cos \vartheta + \phi_t^p)] \end{pmatrix} \quad (\text{A.4})$$

Par identification avec la relation (A.1), nous en déduisons les relations :

$$\left\{ \begin{array}{l} t_p \mathcal{E}_i^p \cos \vartheta \exp(i\phi_t^p) = a_0 \exp(-ik_0 z_0 \cos \vartheta) \\ t_s \mathcal{E}_i^s \exp(i\phi_t^s) = c_0 \exp(-ik_0 z_0 \cos \vartheta) \end{array} \right.$$

A.3 Dépôt d'énergie dans le milieu absorbant

Nous allons calculer à présent la puissance électromagnétique dissipée dans le métal par effet joule. La loi de Joule-Lenz exprime la puissance instantanée dissipée par unité de volume sous la forme [86] :

$$\begin{aligned} \mathcal{P}(\vec{r}, t) = \vec{j}(\vec{r}, t) \cdot \vec{\mathcal{E}}(\vec{r}, t) &= \vec{j}_1(\vec{r}) \cdot \vec{\mathcal{E}}_1(\vec{r}) \sin^2(\omega_0 t) + \vec{j}_2(\vec{r}) \cdot \vec{\mathcal{E}}_2(\vec{r}) \cos^2(\omega_0 t) \\ &+ \left[\vec{j}_1(\vec{r}) \cdot \vec{\mathcal{E}}_2(\vec{r}) + \vec{j}_2(\vec{r}) \cdot \vec{\mathcal{E}}_1(\vec{r}) \right] \sin(\omega_0 t) \cos(\omega_0 t) \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

La puissance moyenne est obtenue après intégration sur une période. Seule la dimension dans la direction de propagation z nous intéresse ici. Après simplification, elle ne fait intervenir

que la partie réelle de la conductivité électrique σ_1 :

$$\begin{aligned}
\mathcal{P}(z) &= \frac{1}{2} [\vec{j}_1(z) \cdot \vec{\mathcal{E}}_2(z) + \vec{j}_2(z) \cdot \vec{\mathcal{E}}_1(z)] = \frac{1}{2} [\sigma_1(z) \vec{\mathcal{E}}_1^2(z) + \vec{\mathcal{E}}_2^2(z)] \\
&= \frac{1}{2} \sigma_1(z) \vec{\mathcal{E}}^2(z) = \omega_0 \epsilon_0 \eta(z) \kappa(z) \vec{\mathcal{E}}^2(z) \\
&= \omega_0 \epsilon_0 \eta(z) \kappa(z) [\vec{\mathcal{E}}_x(z) \vec{\mathcal{E}}_x^*(z) + \vec{\mathcal{E}}_y(z) \vec{\mathcal{E}}_y^*(z) + \vec{\mathcal{E}}_z(z) \vec{\mathcal{E}}_z^*(z)]
\end{aligned} \tag{A.6}$$

où $\mathcal{E}(z) = \sqrt{\vec{\mathcal{E}}_1^2(z) + \vec{\mathcal{E}}_2^2(z)}$ est le module du champ électrique et le symbole $*$ désigne le conjugué de la variable. Dans la maille d'indice n , la valeur du produit scalaire $\vec{\mathcal{E}} \cdot \vec{\mathcal{E}}^*$ se déduit de (A.1) :

$$\begin{aligned}
\vec{\mathcal{E}} \cdot \vec{\mathcal{E}}^* &= c_0 c_0^* \left\{ \gamma_n \gamma_n^* \exp [i(\tilde{k}_n - \tilde{k}_n^*)z'] + \gamma_n \delta_n^* \exp [i(\tilde{k}_n + \tilde{k}_n^*)z'] \right\} \\
&+ c_0 c_0^* \left\{ \delta_n \gamma_n^* \exp [-i(\tilde{k}_n + \tilde{k}_n^*)z'] + \delta_n \delta_n^* \exp [-i(\tilde{k}_n - \tilde{k}_n^*)z'] \right\} \\
&+ a_0 a_0^* \left[1 + \frac{k_0^2 \sin^2 \vartheta}{\tilde{k}_n \tilde{k}_n^*} \right] \left\{ \alpha_n \alpha_n^* \exp [i(\tilde{k}_n - \tilde{k}_n^*)z'] + \beta_n \beta_n^* \exp [-i(\tilde{k}_n - \tilde{k}_n^*)z'] \right\} \\
&+ a_0 a_0^* \left[1 - \frac{k_0^2 \sin^2 \vartheta}{\tilde{k}_n \tilde{k}_n^*} \right] \left\{ \alpha_n \beta_n^* \exp [i(\tilde{k}_n + \tilde{k}_n^*)z'] + \beta_n \alpha_n^* \exp [-i(\tilde{k}_n + \tilde{k}_n^*)z'] \right\}
\end{aligned} \tag{A.7}$$

avec $z' = z - z_{n-1}$

La puissance dissipée par unité de surface entre z_{n-1} et z_n vérifie la relation :

$$\begin{aligned}
\Pi_n &= \int_{z_{n-1}}^{z_n} \langle \mathcal{P}(z) dz \rangle = \omega_0 \epsilon_0 \eta_n \kappa_n \int_{z_{n-1}}^{z_n} \vec{\mathcal{E}}(z) \cdot \vec{\mathcal{E}}^*(z) dz \\
&= \mathcal{A} \int_0^{e_n} \vec{\mathcal{E}}(z') \cdot \vec{\mathcal{E}}^*(z') dz'
\end{aligned} \tag{A.8}$$

où $\mathcal{A} = \omega_0 \epsilon_0 \eta_n \kappa_n$. En intégrant l'équation (A.7) analytiquement, on obtient l'expression de la puissance dissipée dans la maille n :

$$\Pi_n = \Pi_n^1 + \Pi_n^2 + \Pi_n^3 + \Pi_n^4 \tag{A.9}$$

avec :

$$\left\{ \begin{array}{l} \Pi_n^1 = \mathcal{A} c_0 c_0^* \left\{ \frac{\gamma_n \gamma_n^*}{i(\tilde{k}_n - \tilde{k}_n^*)} \left[e^{i(\tilde{k}_n - \tilde{k}_n^*)e_n} - 1 \right] + \frac{\gamma_n \delta_n^*}{i(\tilde{k}_n + \tilde{k}_n^*)} \left[e^{i(\tilde{k}_n + \tilde{k}_n^*)e_n} - 1 \right] \right\} \\ \Pi_n^2 = \mathcal{A} c_0 c_0^* \left\{ -\frac{\delta_n \gamma_n^*}{i(\tilde{k}_n + \tilde{k}_n^*)} \left[e^{-i(\tilde{k}_n + \tilde{k}_n^*)e_n} - 1 \right] - \frac{\delta_n \delta_n^*}{i(\tilde{k}_n - \tilde{k}_n^*)} \left[e^{-i(\tilde{k}_n - \tilde{k}_n^*)e_n} - 1 \right] \right\} \\ \Pi_n^3 = \mathcal{A} a_0 a_0^* \left[1 + \frac{k_0^2 \sin^2 \vartheta}{\tilde{k}_n \tilde{k}_n^*} \right] \left\{ \frac{\alpha_n \alpha_n^*}{i(\tilde{k}_n - \tilde{k}_n^*)} \left[e^{i(\tilde{k}_n - \tilde{k}_n^*)e_n} - 1 \right] - \frac{\beta_n \beta_n^*}{i(\tilde{k}_n - \tilde{k}_n^*)} \left[e^{-i(\tilde{k}_n - \tilde{k}_n^*)e_n} - 1 \right] \right\} \\ \Pi_n^4 = \mathcal{A} a_0 a_0^* \left[1 - \frac{k_0^2 \sin^2 \vartheta}{\tilde{k}_n \tilde{k}_n^*} \right] \left\{ \frac{\alpha_n \beta_n^*}{i(\tilde{k}_n + \tilde{k}_n^*)} \left[e^{i(\tilde{k}_n + \tilde{k}_n^*)e_n} - 1 \right] - \frac{\beta_n \alpha_n^*}{i(\tilde{k}_n + \tilde{k}_n^*)} \left[e^{-i(\tilde{k}_n + \tilde{k}_n^*)e_n} - 1 \right] \right\} \end{array} \right.$$

que l'on peut réécrire en remarquant que la puissance est une quantité réelle :

$$\left\{ \begin{array}{l} \Pi_n^1 = \mathcal{A} |c_0|^2 \left\{ \frac{|\gamma_n|^2}{2\Im_m(\tilde{k}_n)} \left[1 - e^{-2\Im_m(\tilde{k}_n)e_n} \right] + \frac{|\delta_n|^2}{2\Im_m(\tilde{k}_n)} \left[e^{2\Im_m(\tilde{k}_n)e_n} - 1 \right] \right\} \\ \Pi_n^2 = \mathcal{A} |c_0|^2 \times 2 \Re_e \left\{ \frac{\gamma_n \delta_n^*}{i(\tilde{k}_n + \tilde{k}_n^*)} \left[e^{i(\tilde{k}_n + \tilde{k}_n^*)e_n} - 1 \right] \right\} \\ \Pi_n^3 = \mathcal{A} |a_0|^2 \left[1 + \frac{k_0^2 \sin^2 \vartheta}{|\tilde{k}_n|^2} \right] \left\{ \frac{|\alpha_n|^2}{2\Im_m(\tilde{k}_n)} \left[1 - e^{-2\Im_m(\tilde{k}_n)e_n} \right] + \frac{|\beta_n|^2}{2\Im_m(\tilde{k}_n)} \left[e^{2\Im_m(\tilde{k}_n)e_n} - 1 \right] \right\} \\ \Pi_n^4 = \mathcal{A} |a_0|^2 \left[1 - \frac{k_0^2 \sin^2 \vartheta}{|\tilde{k}_n|^2} \right] \times 2 \Re_e \left\{ \frac{\alpha_n \beta_n^*}{i(\tilde{k}_n + \tilde{k}_n^*)} \left[e^{i(\tilde{k}_n + \tilde{k}_n^*)e_n} - 1 \right] \right\} \end{array} \right.$$

Calculs préliminaires d'un faisceau laser focalisé

Dans le problème précis qui nous intéresse ici, le faisceau laser est focalisé sur la surface avant de l'échantillon. Notre volonté étant de se rapprocher le plus possible des conditions expérimentales, nous avons essayé d'exprimer la forme des champs électromagnétiques dans cette configuration. Cette annexe un peu particulière va être l'objet d'une étude inachevée de la description de ces champs. En mettant l'accent sur le fait qu'un faisceau dit gaussien ne satisfait pas aux équations de Maxwell, nous évoquerons la nécessité de dépasser l'approximation paraxiale. Nous proposerons alors une expression plus complète des champs, pour lesquelles nous avons envisagé d'étudier leur propagation au moyen d'une méthode inspirée de la détection radar.

B.1 Position du problème

Pour connaître l'expression du champ électrique dans un milieu à deux dimensions, nous devons faire propager un champ provenant d'une source, supposée à l'infini, à travers un milieu inhomogène. Pour cela, il est nécessaire de connaître avec précision la forme du champ à l'interface milieu-vide et donc de posséder une expression de \mathcal{E} dans le vide. Nous allons déterminer celle-ci en exprimant l'équation de Helmholtz dans une géométrie 2D. Dans un milieu homogène et isotrope, l'équation d'onde vectorielle de Helmholtz se réduit à l'équation scalaire qui s'écrit en coordonnées cylindriques :

$$\frac{\partial^2 \Psi}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial \Psi}{\partial \rho} + \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \phi^2} + \frac{\partial^2 \Psi}{\partial z^2} + k^2 \Psi = 0 \quad (\text{B.1})$$

Il est possible de résoudre cette équation en séparant les variables ρ, ϕ, z . Des solutions s'obtiennent en supposant que la variation rapide de Ψ est contenue dans le facteur $\exp(ikz)$. Donc, en écrivant la solution sous la forme $\Psi = e^{ikz}\mathcal{G}$, les modes à symétrie axiale s'écrivent :

$$\frac{\partial^2 \mathcal{G}}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial \mathcal{G}}{\partial \rho} + \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2 \mathcal{G}}{\partial \phi^2} + \frac{\partial^2 \mathcal{G}}{\partial z^2} = 0$$

L'approximation couramment effectuée consiste alors à négliger le terme $\partial^2 \mathcal{G} / \partial z^2$ et nous en déduisons l'expression du mode fondamental :

$$\Psi_{\mathcal{G}} = \frac{b}{\sqrt{b^2 + z^2}} \exp \left[\frac{-bk\rho^2}{2(b^2 + z^2)} \right] \exp i \left\{ kz - \text{atan} \left(\frac{b}{z} \right) + \frac{kz\rho^2}{2(b^2 + z^2)} \right\} \quad (\text{B.2})$$

où la longueur b est la longueur de Rayleigh ou la longueur de diffraction. Le module de $\Psi_{\mathcal{G}}$ est $\exp(-\rho^2/\omega_0)$ avec $\omega_0 = (2b/k)^{1/2}$ correspondant à la section (« waist ») du faisceau au foyer en $z = 0$.

Cette approximation, dite paraxiale, suppose que \mathcal{G} varie lentement dans la direction z . Effectivement, \mathcal{G} varie peu à l'échelle de la longueur d'onde dans la direction de propagation si la diffraction est faible, typiquement tant que l'angle d'ouverture du faisceau ne dépasse pas 30° [134]. Cette formulation constitue précisément les modes d'une cavité laser dont la longueur est beaucoup plus grande que sa dimension transverse.

Il est facile de constater que l'expression (B.2) ne satisfait pas les équations de Maxwell et que sous l'hypothèse paraxiale, le champ ne satisfait pas non plus l'équation de Helmholtz (B.1). En effet, la nullité requise pour la divergence du champ électrique dans le vide n'est pas respectée :

$$\vec{\text{div}} \cdot \vec{\mathcal{E}} = \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} (\rho \mathcal{E}_\rho) \neq 0$$

Une composante longitudinale du champ électrique est en réalité indispensable pour répondre correctement aux exigences imposées par les équations de Maxwell. Il s'avère ainsi que l'expression des faisceaux gaussiens n'est pas suffisante pour déterminer la valeur des champs EM, notamment au voisinage du foyer. Nous avons donc été amenés à rechercher la classe des solutions de l'équation de Helmholtz en géométrie cylindrique pour pouvoir traiter correctement notre problème.

B.2 Expression bidimensionnelle du champ électromagnétique

Alors que l'équation d'onde paraxiale admet des solutions de type Bessel-Gauss polarisées azimuthalement, celle non-paraxiale doit s'écrire comme une combinaison linéaire de fonctions de Bessel, qui est la fonction propre de l'équation d'onde en géométrie cylindrique [26, 70].

$$\begin{cases} \mathcal{E}_\rho = \mathcal{E}_0 \cos \theta J_1(k\rho \sin \theta) e^{ikz \cos \theta} \\ \mathcal{E}_z = i \mathcal{E}_0 J_0(k\rho \sin \theta) e^{ikz \cos \theta} \\ \mathcal{H}_\phi = \mathcal{E}_0 \sin \theta J_1(k\rho \sin \theta) e^{ikz \cos \theta} \end{cases} \quad (\text{B.3})$$

En 1959, Richards et Wolf ont développé l'expression relative à un faisceau focalisé en géométrie cylindrique [123]. Ils se sont plus particulièrement intéressés au cas de l'illumination d'un diaphragme avec un faisceau uniformément polarisé. Récemment, plusieurs groupes se sont servis de leurs résultats pour exprimer sous forme vectorielle les faisceaux lasers à symétrie cylindrique [14, 57, 164]. Tout comme ces auteurs, nous souhaitons nous restreindre au cas des faisceaux présentant une parfaite symétrie cylindrique pour faciliter notre approche. Deux classes orthogonales de champs électromagnétiques, duales l'une de l'autre, s'avèrent préserver la symétrie axiale du système optique :

- Ceux dont le champ électrique est aligné selon une orientation azimuthale par rapport à l'axe optique, alors que le champ magnétique est radial.
- Ceux dont le champ électrique présente une polarisation uniquement radiale, alors que le champ magnétique est azimuthal.

Youngworth et Brown ont considéré le comportement de faisceaux parfaitement cylindriques, focalisés à partir d'une ouverture de taille finie, à la limite non-paraxiale [163]. Au voisinage du foyer, ils font apparaître que lors d'une forte focalisation, le faisceau polarisé azimuthalement restait transverse, alors que celui présentant une polarisation radiale amplifiait sa composante longitudinale, pouvant alors excéder la composante transverse. Ils montrent que les champs s'écrivent dans le cas d'un champ électrique à symétrie radiale :

$$\begin{cases} \mathcal{E}_\rho = \mathcal{E}_0 \int_0^\alpha \cos^{1/2} \theta \sin(2\theta) l_0(\theta) J_1(k\rho \sin \theta) e^{ikz \cos \theta} d\theta \\ \mathcal{E}_z = 2i \mathcal{E}_0 \int_0^\alpha \cos^{1/2} \theta \sin^2 \theta l_0(\theta) J_0(k\rho \sin \theta) e^{ikz \cos \theta} d\theta \end{cases} \quad (\text{B.4})$$

et dans le cas d'un champ électrique à symétrie azimuthale :

$$\mathcal{E}_\phi = 2 \mathcal{E}_0 \int_0^\alpha \cos^{1/2} \theta \sin \theta l_0(\theta) J_1(k\rho \sin \theta) e^{ikz \cos \theta} d\theta \quad (\text{B.5})$$

où $l_0(\theta)$ est la fonction d'apodisation permettant d'ajuster la forme du faisceau à la manière d'un filtre spatial approprié. Nous avons utilisé une fonction de la forme Bessel-Gauss pour nous

rapprocher des caractéristiques d'un faisceau laser [72]. Elle s'écrit en fonction du paramètre β_0 , rapport entre le rayon du diaphragme et la section du faisceau :

$$l_0(\theta) = \exp \left[-\beta_0^2 \left(\frac{\sin \theta}{\sin \alpha} \right)^2 \right] J_1 \left(2\beta_0 \frac{\sin \theta}{\sin \alpha} \right)$$

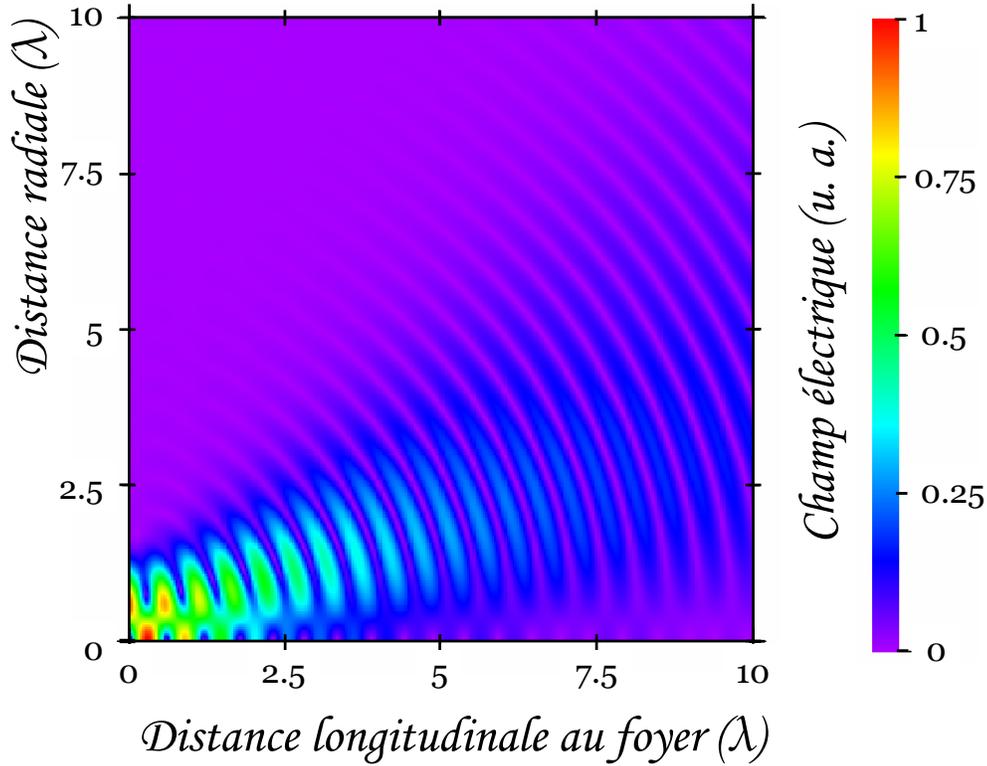


FIG. B.1 – Cartographie du module du champ électrique de polarisation radiale et longitudinale dans la zone focale. Les distances sont exprimées en longueur d'onde de l'irradiation incidente.

Nous avons représenté le module de ces champs dans un plan (ρ, z) , au voisinage du point de focalisation $(0, 0)$ en fixant $\beta = 3/2$. Sur la figure (B.1), est reporté le module du champ électrique $\left(\sqrt{\mathcal{E}_\rho^2 + \mathcal{E}_z^2} \right)$ calculé grâce aux expressions (B.4). La composante longitudinale du champ \mathcal{E}_z acquiert de l'importance au voisinage du foyer et principalement au voisinage de l'axe ($\rho = 0$). Elle est négligeable devant \mathcal{E}_ρ loin du foyer puis devient prépondérante proche de ($z = 0$). Au contraire, le champ électrique d'un faisceau polarisé suivant la direction azimutale, représenté figure (B.2), ne crée pas de composante longitudinale. Dans ce cas, le champ reste transverse durant sa propagation. L'intensité maximale est atteinte sur l'axe ($z = 0$), le long d'une couronne ($\rho \neq 0$).

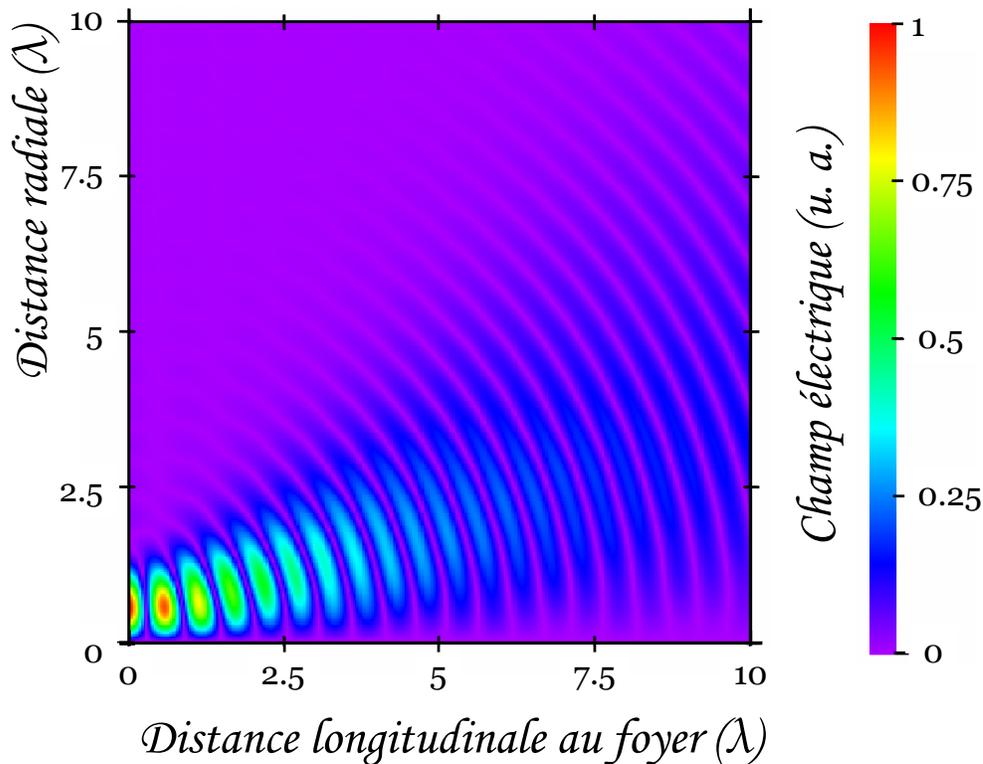


FIG. B.2 – Cartographie du module du champ électrique présentant une polarisation uniquement azimutale dans la zone focale. Les distances sont exprimées en longueur d'onde de l'irradiation incidente.

Ces faisceaux uniformément polarisés ont l'avantage de montrer les différents comportements physiques auxquels nous devons nous attendre lors de la convergence d'un faisceau à symétrie 2D. Ces champs n'ont toutefois qu'un intérêt limité puisqu'ils sont difficilement reliables aux champs observés expérimentalement. Constituant la base des fonctions à géométrie cylindrique, la description du faisceau laser s'exprimera néanmoins comme une combinaison linéaire des champs que nous venons de présenter. Ainsi cette première étude fait apparaître le fort champ électrique longitudinal accompagnant nécessairement la convergence d'un faisceau polarisé radialement alors que le champ azimutal garde sa symétrie durant la focalisation.

B.3 Méthode numérique de propagation - Schéma de Yee

Nous allons maintenant présenter les bases du travail que nous avons amorcé concernant l'étude de la propagation des champs, sans toutefois aboutir à une description utilisable. Parmi les méthodes numériques de résolution des équations de Maxwell, les schémas aux différences finis sont les plus simples à mettre en œuvre. Les calculs de la diffraction d'une onde électromagnétique par un solide sont régulièrement effectués au moyen des méthodes dites FDTD (*Finite-Difference Time-Domain*). Elles permettent en effet de fournir une solution rigoureuse

des équations de Maxwell résolues en temps, sans approximation lors de la propagation des champs. La méthode numérique que nous allons exposer a pour objet le calcul du champ électromagnétique à l'intérieur ainsi qu'à l'extérieur du milieu diffractant. Elle est basée sur un calcul aux différences finies à l'intérieur d'un espace discrétisé en cellules élémentaires. Il s'agit du schéma de Yee, de type saute-mouton, puisque les champs \mathcal{E} et \mathcal{H} sont évalués avec un décalage d'un demi-pas de temps sur un maillage théoriquement composé de deux grilles imbriquées, elles aussi décalées d'un demi-intervalle d'espace.

Nous supposons que le champ incident $(\vec{\mathcal{E}}_i, \vec{\mathcal{H}}_i)$ est connu, en l'exprimant par exemple sous la forme vue dans le paragraphe précédent, et nous désignerons par le couple $(\vec{\mathcal{E}}_d, \vec{\mathcal{H}}_d)$ le champ diffracté calculé. Le champ total $(\vec{\mathcal{E}}, \vec{\mathcal{H}})$ s'exprime alors comme la somme du champ incident et du champ diffracté. La simplification du problème s'opère en utilisant le principe d'Huygens stipulant qu'un champ EM extérieur à un solide (S) est équivalent à un courant circulant sur la surface de (S). Ce concept s'exprime mathématiquement au moyen des fonctions de Green et peut être trouvé dans Chew [26]. Dans notre cas 2D, il est ainsi possible de remplacer le champ incident $(\vec{\mathcal{E}}_i, \vec{\mathcal{H}}_i)$ par un courant circulant sur les bords de notre objet (S). Ainsi, la méthode de calcul proposée repose sur le calcul du champ diffracté uniquement, ce qui transforme le problème initial en un problème de rayonnement dans l'espace libre. Seuls des termes de courants sont ajoutés au système d'équations précédent. Un courant électrique $\vec{J}_S = -\vec{n} \times \vec{\mathcal{H}}_i$ et un courant magnétique $\vec{M}_S = \vec{n} \times \vec{\mathcal{E}}_i$ s'ajoutent alors aux équations du champ diffracté. Celles-ci s'écrivent en coordonnées cylindriques :

$$\begin{cases} \frac{\partial \mathcal{E}_\rho}{\partial t} = -\frac{1}{\epsilon} \left(\sigma \mathcal{E}_\rho + \frac{\partial \mathcal{H}_\phi}{\partial z} \pm J_\rho \right) \\ \frac{\partial \mathcal{E}_z}{\partial t} = -\frac{1}{\epsilon} \left[\sigma \mathcal{E}_z - \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} (\rho \mathcal{H}_\phi) \pm J_z \right] \\ \frac{\partial \mathcal{H}_\phi}{\partial t} = \frac{1}{\mu_0} \left(\frac{\partial \mathcal{E}_z}{\partial \rho} - \frac{\partial \mathcal{E}_\rho}{\partial z} \mp M_\phi \right) \end{cases} \quad (\text{B.6})$$

Notre milieu diffractant (S) est placé à l'intérieur du maillage au sein duquel nous voulons faire propager les champs EM. Pour simuler l'espace infini qui entoure le solide, il est indispensable d'introduire une couche ayant la propriété d'absorber le rayonnement électromagnétique sans le réfléchir sur les limites du maillage. Celle-ci permet de ne pas simuler un espace infini mais sa détermination pose néanmoins de sérieuses difficultés [11, 117].

Le volume de calcul est divisé en mailles élémentaires rectangulaires, de dimension $\Delta\rho, \Delta z$. Les composantes du champ sont alors calculées en des points distincts représentés sur la figure (B.3).

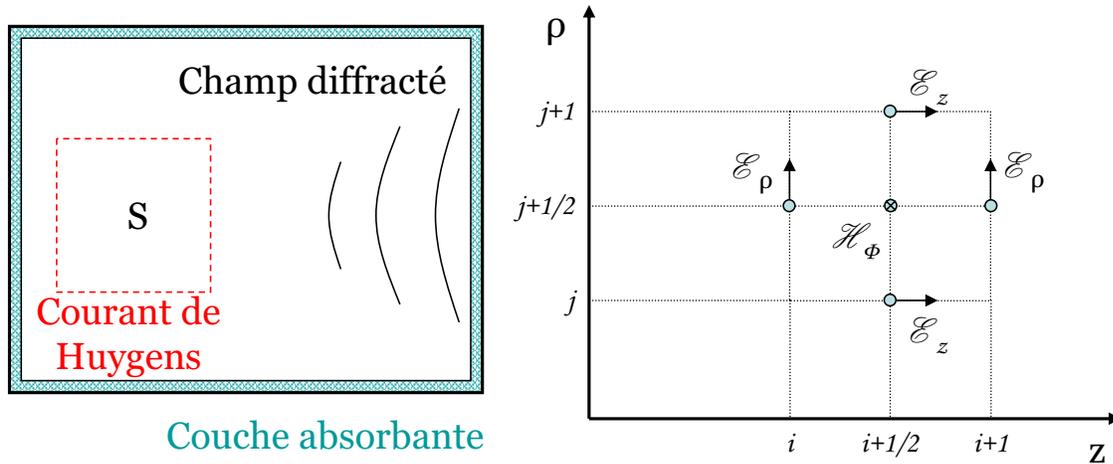


FIG. B.3 – Schémas du volume de calcul et du maillage sur lequel s'applique la discrétisation des champs $\mathcal{E}_\rho, \mathcal{E}_z, \mathcal{H}_\phi$ dans le cadre du schéma de Yee.

Cette disposition des points de calcul permet d'utiliser des différences finies centrées pour les dérivées spatiales. Pour les dérivées temporelles, des différences finies centrées sont obtenues en calculant les champs électrique et magnétique à des instants décalés de $\Delta t/2$, pour un incrément de temps Δt . A l'aide du schéma de Yee, nous pouvons exprimer l'expression des champs discrétisés, en dehors de l'interface avec le solide (S) sur laquelle il faudrait ajouter les termes de courant. Tout d'abord pour le champ radial \mathcal{E}_ρ , nous obtenons :

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_\rho \Big|_{i,j+1/2}^{n+1} &= \frac{1 - \sigma\Delta t/2\epsilon}{1 + \sigma\Delta t/2\epsilon} \mathcal{E}_\rho \Big|_{i,j+1/2}^n \\ &- \frac{\Delta t}{\epsilon(1 + \sigma\Delta t/2\epsilon)} \left[\frac{\mathcal{H}_\phi \Big|_{i+1/2,j+1/2}^{n+1/2} - \mathcal{H}_\phi \Big|_{i-1/2,j+1/2}^{n+1/2}}{\Delta z} \right] \end{aligned}$$

De manière équivalente, le champ longitudinal \mathcal{E}_z à l'instant $n + 1$ s'écrit :

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_z \Big|_{i+1/2,j}^{n+1} &= \frac{1 - \sigma\Delta t/2\epsilon}{1 + \sigma\Delta t/2\epsilon} \mathcal{E}_z \Big|_{i+1/2,j}^n \\ &+ \frac{\Delta t}{\epsilon(1 + \sigma\Delta t/2\epsilon)} \left[\frac{\rho_{j+1/2} \mathcal{H}_\phi \Big|_{i+1/2,j+1/2}^{n+1/2} - \rho_{j-1/2} \mathcal{H}_\phi \Big|_{i-1/2,j+1/2}^{n+1/2}}{\rho_j \Delta \rho} \right] \end{aligned}$$

Enfin, le champ magnétique \mathcal{H}_ϕ est calculée à l'instant $n + 1/2$ suivant l'expression :

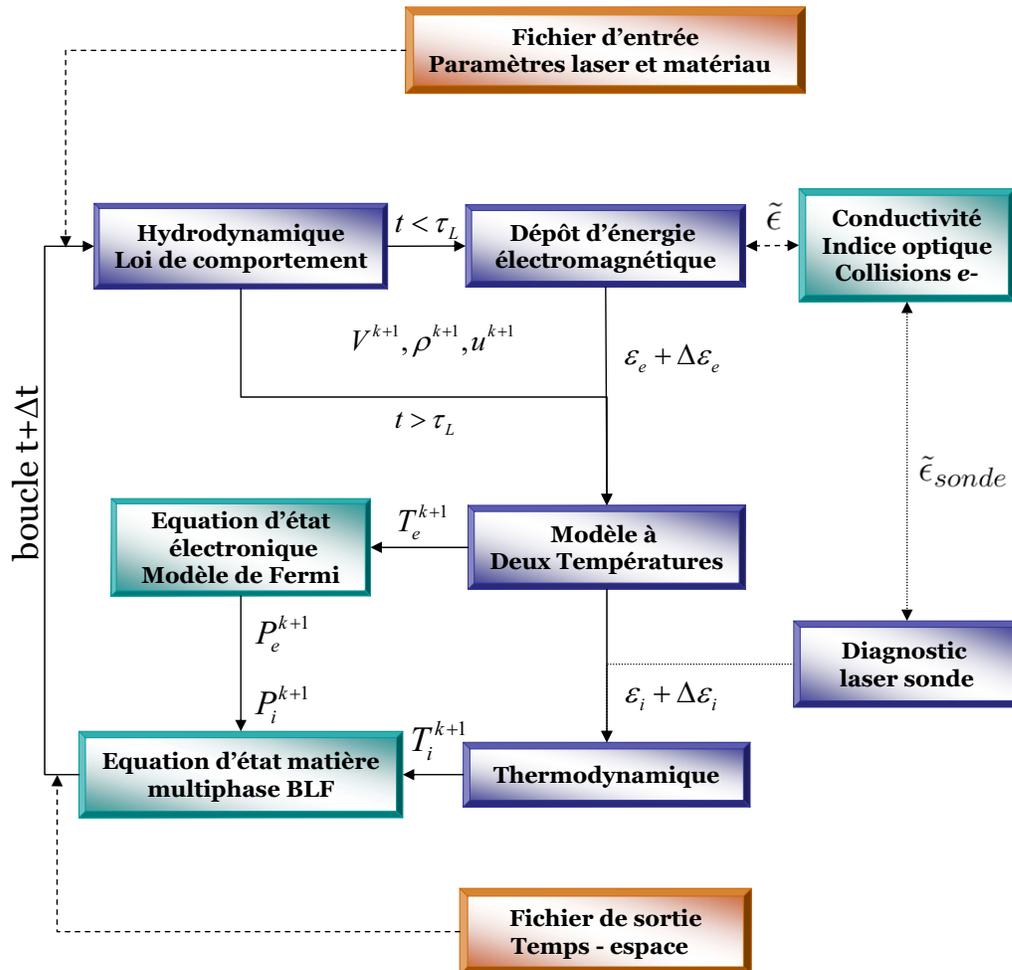
$$\begin{aligned} \mathcal{H}_\phi \Big|_{i+1/2,j+1/2}^{n+1/2} &= \mathcal{H}_\phi \Big|_{i+1/2,j+1/2}^{n-1/2} \\ &+ \frac{\Delta t}{\mu_0} \left[\frac{\mathcal{E}_z \Big|_{i+1/2,j+1}^n - \mathcal{E}_z \Big|_{i+1/2,j}^n}{\Delta \rho} - \frac{\mathcal{E}_\rho \Big|_{i+1/2,j+1/2}^n - \mathcal{E}_\rho \Big|_{i,j+1/2}^n}{\Delta z} \right] \end{aligned}$$

Les problèmes associés à une telle méthode sont de deux ordres. Le premier est qu'elle est très exigeante en temps de calcul : le nombre de pas itératifs est fixé par la longueur d'onde sur un domaine devant couvrir plusieurs micromètres en ρ et seulement quelques dizaines de nm en z , ceci pour chaque pas de temps. En effet, la vitesse physique de propagation de l'onde ne doit pas dépasser la vitesse de propagation dans le calcul à travers le maillage et cet algorithme est soumis à la condition de stabilité reliant le pas de temps Δt aux intervalles d'espacement du maillage $\Delta\rho$ et Δz :

$$\Delta t \leq \frac{1}{c\sqrt{\frac{1}{\Delta\rho^2} + \frac{1}{\Delta z^2}}} \quad (\text{B.7})$$

Le second problème est lié aux conditions aux limites qui doivent être parfaitement définies pour résoudre correctement le problème. Il faut utiliser pour cela des couches dites absorbantes sur les bords du maillage, dont l'expression est plus difficile à établir dans une géométrie cylindrique que dans une géométrie cartésienne. Ajouté au fait que leur efficacité est souvent remise en question, nous n'en avons pas insérées dans notre calcul. C'est la raison pour laquelle nous ne présenterons pas de résultats concernant cette approche de propagation bidimensionnelle. Une autre méthode a alors été proposée pour décrire cette propagation sous la forme d'une résolution de l'équation de Helmholtz en géométrie sphérique [30].

Organigramme du code Delpor



Bibliographie

- [1] A. A. ABRIKOSOV. Fundamentals of the Theory of Metals. North-Holland. Amsterdam - Oxford - New-York - Tokyo (1988).
- [2] Y. V. AFANASIEV, B. N. CHICHKOV, N. N. DEMCHENKO, V. A. ISAKOV & I. N. ZAVESTOVSKAYA. *28th Conference on Contr. Fusion and Plasma Phys. Funchal, ECA 25A*, **2021** (2001).
- [3] S. I. ANISIMOV, B. L. KAPELIOVICH & T. L. PEREL'MAN. Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses. *Sov. Phys. JETP* **39**, p.375-377 (1974).
- [4] S. I. ANISIMOV & B. RETHFELD. On the theory of ultrashort laser pulse interaction with a metal. *Proc. SPIE - Int. Soc. Opt. Eng. (USA)* **3093**, p.192-203 (1996).
- [5] S. I. ANISIMOV & B. S. LUK'YANCHUK. Selected problems of laser ablation theory. *Usp. Fiz. Nauk.* **172**, p.301-333 (2002) [*Phys.-Usp.* **45**, p.293-324 (2002)].
- [6] S. I. ANISIMOV, V. V. ZHAKHOVSKI, N. A. INOGAMOV, K. NISHIHARA, A. M. OPARIN & YU. V. PETROV. Destruction of a Solid Film under the Action of Ultrashort Laser Pulse. *JETP Lett.* **77** p.606-610 (2003).
- [7] N. W. ASHCROFT. *Philos. Mag.* **8**, p.2055 (1963).
- [8] N. W. ASHCROFT & J. W. WILKINS. Low Temperature Electronic Specific Heat of Simple Metals. *Physics Letters* **14**, p.285 (1965).
- [9] N. W. ASHCROFT & K. STURM. Interband absorption and the optical properties of polyvalent metals. *Phys. Rev. B* **3**, p.1898 (1971).

- [10] N. W. ASHCROFT & N. D. MERMIN. Solid State Physics. Saunders College Publishing, Harcourt Grace College Publishers Fort Worth (1976).
- [11] J.-P BERENGER. Three-dimensional perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves. *J. Comput. Phys.* **127**, p.363-379 (1996).
- [12] H. A. BETHE. The theory of shock waves for an arbitrary equation of state. *Office of Scientific Research and Development*. Rep. **545** (1942).
- [13] J.-Y. BIGOT, J.-C. MERLE, O. CREGUT & A. DAUNOIS. Electron dynamics in copper metallic nanoparticles probed with femtosecond optical pulses. *Phys. Rev. Lett.* **75**, p.4702-4706 (1995).
- [14] D. P. BISS & T. G. BROWN. Cylindrical vector beam focusing through a dielectric interface. *Opt. Express* **9**, p.490-497 (2001).
- [15] F. BONNEAU, P. COMBIS, J. L. RULLIER, J. VIERNE, B. BERTUSSI, M. COMMANDRÉ, L. GALLAIS, J. Y. NATOLI, I. BERTRON, F. MALAISE, & J.T. DONOHUE. Numerical simulations for description of UV laser interaction with gold nanoparticles embedded in silica. *Appl. Phys. B* **78**, p.447-452 (2004).
- [16] C. BOLIS, L. BERTHE, M. BOUSTIE, M. ARRIGONI, M. JEANDIN & S. BARRADAS. Mécanismes de rupture d'interfaces sous sollicitation dynamique rapide. *J. Phys. IV France* **106**, p.141-149 (2003).
- [17] M. BORN & E. WOLF. Principles of optics. 6^{ème} édition, Pergamon Press, (1980).
- [18] D. BRISSET. Mise en vitesse d'un projectile mince par impulsion laser en mode de plasma confiné. Etude de matériaux pour l'optimisation des performances de l'interaction. Thèse de doctorat. Université de Poitiers (1998).
- [19] G. BRUHAT. Cours de Physique Générale - Optique 4^{ème} édition. Masson-Paris (1954).
- [20] N. M. BULGAKOVA. Possibility of rarefaction shock wave under short pulse laser ablation of solids. *Phys. Rev. E* **60**, p.R3498-3500 (1999).
- [21] N. M. BULGAKOVA & A. V. BULGAKOV. Pulsed laser ablation of solids : transition from normal vaporization to phase explosion. *Appl. Phys. A* **73**, p.199-208 (2001).
- [22] N. M. BULGAKOVA & I. M. BOURAKOV. Phase explosion under ultrashort pulsed laser ablation : modelling with analysis of metastable state of melt. *Appl. Surf. Sci.* **197/198**, p.41-44 (2002).
- [23] A. V. BUSHMAN, I. V. LOMONOSOV & V. E. FORTOV. Models of wide-range equations of state for matter under conditions of high energy density. *Sov. Tech. Rev. B :Therm.*

Phys. **5**, 1 (1993).

- [24] P. CELLIERS & A. NG. Optical probing of hot expanded states produced by shock release. *Phys. Rev. E* **47**, p.3547-3565 (1993).
- [25] J. K. CHEN, J. E. BERAUN, L. E. GRIMES & D. Y. TZOU. Short-time thermal effects on thermomechanical response caused by pulse lasers. *AIAA J. Thermophys. Heat Transf.* **17**, p.35-42 (2003).
- [26] W. C. CHEW. Waves and fields in inhomogeneous media. Van Nostrand Reinhold, New York (1990).
- [27] B. N. CHICHKOV, C. MOMMA, S. NOLTE, F. VON ALVENSLEBEN & A. TÜNNERMANN. Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids. *Appl. Phys. A* **63**, p.109-115 (1996).
- [28] C. COHEN-TANNOUJDI, B. DIU & F. LALOË. Mécanique Quantique. Enseignement des sciences. Hermann, Paris (1973).
- [29] J.P. COLOMBIER, P. COMBIS, F. BONNEAU, R. LE HARZIC & E. AUDOUARD. Hydrodynamic simulations of metal ablation by femtosecond laser irradiation. *Phys. Rev. B* **71**, p.165406 (2005).
- [30] P. COMBIS J. ROBICHE. Electromagnetic computational method for the scattering of an axisymmetric laser beam by an inhomogeneous body of revolution. *J. Opt. Soc. Am.* **22**, p.1850 (2005).
- [31] P. B. CORKUM, F. BRUNEL, N. K. SHERMAN & T. SRINIVASAN-RAO. Thermal response of metals to ultrashort-pulse laser excitation. *Phys. Rev. Lett.* **61**, p.2886 (1988).
- [32] N. DEL FATTI, C. VOISIN, M. ACHERMANN, S. TZORTZAKIS, D. CHRISTOFILOS & F. VALLÉE. Nonequilibrium electron dynamics in noble metals. *Phys. Rev. B* **61**, p.16956-16966 (2000).
- [33] B. DIU, C. GUTHMANN, D. LEDERER & B. ROULET. Physique Statistique. Enseignement des sciences. Hermann, Paris (1997).
- [34] W. EBELING, A. FÖRSTER, V. FORTOV, V. GRIAZNOV & A. POLISHCHUK. Thermophysical Properties of Hot Dense Plasmas. Teubner, Stuttgart (1991).
- [35] G. L. EESLEY. Observation of nonequilibrium electron heating in copper. *Phys. Rev. Lett.* **51**, p.2140-2143 (1983).
- [36] G. L. EESLEY. Generation of nonequilibrium electron and lattice temperatures in copper by picosecond laser pulses. *Phys. Rev. B* **33**, p.2144-2151 (1986).

- [37] K. EIDMANN, J. MEYER-TER-VEHN, T. SCHLEGEL & S. HÜLLER. Hydrodynamic simulation of subpicosecond laser interaction with solid-density matter. *Phys. Rev. E* **62**, p.1202-1214 (2000).
- [38] H. EHRENREICH, H. R. PHILLIP & B. SEGALL. Optical properties of aluminum. *Phys. Rev.* **132**, p.1918 (1963).
- [39] H. E. ELSAYED-ALI, T. B. NORRIS, M. A. PESSOT & G. A. MOUROU. Time-Resolved Observation of Electron-Phonon Relaxation in Copper. *Phys. Rev. Lett.* **58**, p.1212-1215 (1987).
- [40] W. S. FANN, R. STORZ, H. W. K. TOM & J. BOKOR. Direct Measurement of Nonequilibrium Electron-Energy Distribution in Subpicosecond Laser-Heated Gold Films. *Phys. Rev. Lett.* **68**, p.2834-2837 (1992).
- [41] W. S. FANN, R. STORZ, H. W. K. TOM & J. BOKOR. Electron thermalization in gold. *Phys. Rev. B* **46**, p.13592-13595 (1992).
- [42] R. FEDOSEJEVS, R. OTTMANN, R. SIGEL, G. KÜNLE, S. SZATMARI & F. P. SCHÄFER. Absorption of femtosecond laser pulses in high-density plasma. *Phys. Rev. Lett.* **64**, p.1250-1253 (1990).
- [43] D. FISHER, M. FRAENKEL, Z. HENIS, E. MOSHE & S. ELIEZER. Interband and intraband (Drude) contributions to femtosecond laser absorption in aluminum. *Phys. Rev. E* **65**, p.016409 (2001).
- [44] R. L. FORK, B. I. GREEN & C. V. SHANK. Generation of optical pulses shorter than 0.1 psec by colliding pulse mode locking. *Appl. Phys. Lett.* **38**, p.671 (1981).
- [45] V. E. FORTOV & I. V. LOMONOSOV. Thermodynamics of Extreme States of Matter. *Pure & Appl. Chem.* **69**, p.893-904 (1997).
- [46] P. FROMY, C. DEUTSCH & G. MAYNARD. Thomas-Fermi-like and average atom models for dense and hot matter. *Phys. Plasmas* **3**, p.714-730 (1992).
- [47] FUCKE & U. SEYDEL. Improved experimental determination of critical-point data for tungsten. *High Temp High Pressures.* **12**, p.419-432 (1980).
- [48] J. G. FUJIMOTO, J. M. LIU, E. P. IPPEN & N. BLOEMBERGEN. Femtosecond laser interaction with metallic tungsten and nonequilibrium electron and lattice temperatures. *Phys. Rev. Lett.*, **53**, p.1837-1840 (1984).
- [49] K. FURUSAWA, K. TAKAHASHI, H. KUMAGAI, K. MIDORIKAWA & M. OBARA. Ablation characteristics of Au, Ag, and Cu metals using a femtosecond Ti :sapphire laser. *Appl. Phys. A : Mater. Sci. Process.* **69**, p.359 (1999).

- [50] E. G. GAMALY, A. V. RODE, B. LUTHER-DAVIS & V. T. TIKHONCHUK. Ablation of solids by femtosecond lasers : ablation mechanism and ablation thresholds for metals and dielectrics. *Phys. Plasmas* **9**, p.949-957 (2002).
- [51] B. GÁMEZ & J. L. OCAÑA. A theoretical method for the calculation of frequency- and temperature-dependent interaction constants applicable to the predictive assessment of laser materials processing. *J. Phys. D : Appl. Phys.* **33**, p.305-312 (2000).
- [52] J. P. GIRARDEAU-MONTAUT & C. GIRARDEAU-MONTAUT. Theory of ultrashort non-linear multiphoton photoelectric emission from metals. *Phys. Rev. B* **51**, p.13560-13657 (1995).
- [53] D. E. GRADY. The spall strength of condensed matter. *J. Mech. Phys. Solids* **36**, p.353 (1988).
- [54] R. H. M. GROENEVELD, R. SPRIK & A. LAGENDIJK. Effect of a nonthermal electron distribution on the electron-phonon energy relaxation process in noble metals. *Phys. Rev. B* **45**, p.5079-5082 (1992).
- [55] R. H. M. GROENEVELD, R. SPRIK & A. LAGENDIJK. Femtosecond Spectroscopy of electron-electron and electron-phonon energy relaxation in Ag and Au. *Phys. Rev. B* **51**, p.11433-11445 (1995).
- [56] P. GRUA, J. P. MORREEUW, H. BERCEGOL, G. JONUSAUSKAS & F. VALLÉE. Electron kinetics and emission for metal nanoparticles exposed to intense laser pulses. *Phys. Rev. B* **68**, p.035424 (2003).
- [57] D. G. HALL. Vector-beam solutions of Maxwell's wave equation. *Opt. Lett.* **21**, p.9-11 (1996).
- [58] L. E. HARGROVE, R. L. FORK & M. A. POLLAK. Locking of He-Ne laser modes induced by synchronous intracavity modulation. *Appl. Phys. Lett.* **5**, p.4 (1964).
- [59] W. A. HARRISON. Solid state theory. Dover publications, Inc. New-York (1979).
- [60] M. HASHIDA, A. SEMEROK, O. GOBERTA, G. PETITE & J.-F. WAGNER. Ablation Thresholds of metals with femtosecond laser pulses. *Proc. SPIE* **4423**, p.178-185 (2001).
- [61] T. HERTEL, E. KNOESEL, M. WOLF & G. ERTL. Ultrafast electron dynamics at Cu(111) : response of an electron gas to optical excitation. *Phys. Rev. Lett.* **76**, p.535-538 (1996).
- [62] J. HOHLFELD, J. G. MÜLLER, S.-S. WELLERSHOFF & E. MATTHIAS. Time-resolved thermorefectivity of thin gold films and its dependence on film thickness. *Appl. Phys. B* **64**, p.387-390 (1997).

- [63] N. A. INOGAMOV, Y. V. PETROV, S. I. ANISIMOV, A. M. OPARIN, N.V. SHAPOSHNIKOV, D. VON DER LINDE & J. MEYER-TER-VEHN. Expansion of matter heated by an ultrashort laser pulse. *Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **69**, p.284-289 (1999) [JETP Lett. **69**, p.310-316 (1999)].
- [64] N. A. INOGAMOV, S. I. ANISIMOV & B. RETHFELD. Rarefaction wave and gravitational equilibrium in a two-phase liquid-vapor medium. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **115**, p.2091-2105 (1999) [*J. Exp. Theor. Phys.* **88**, p.1143-1149 (1999)].
- [65] T. E. ITINA, J. HERMANN, P. DELAPORTE & M. SENTIS. Laser-generated plasma plume expansion : combined continuous-microscopic modeling. *Phys. Rev. E* **66**, 066406 (2002).
- [66] T. E. ITINA, J. HERMANN, PH. DELAPORTE & M. SENTIS. Modeling of metal ablation induced by ultrashort laser pulses. *Thin Solid Films* **453-454**, p.513-517 (2004).
- [67] T. E. ITINA, F. VIDAL, PH. DELAPORTE & M. SENTIS. Numerical study of ultrashort laser ablation of metals and of laser plume dynamics. *Appl. Phys. A* **79**, p.1089-1092 (2004).
- [68] D. S. IVANOV & L. V. ZHIGILEI. Effect of pressure relaxation on the mechanisms of short-pulse laser melting. *Phys. Rev. Lett.* **91**, p.105701 (2003).
- [69] D. S. IVANOV & L. V. ZHIGILEI. Combined atomistic-continuum modeling of short-pulse laser melting and disintegration of metal films. *Phys. Rev. B* **68**, p.064114 (2003).
- [70] J. D. JACKSON. Classical Electrodynamics. 2^d édition Wiley, New-York (1975).
- [71] A. L. JAUMOTTE. Chocs et ondes de choc. Editions Masson, Paris (1971).
- [72] R. H. JORDAN & D. G. HALL. Free-space azimuthal paraxial wave equation : the azimuthal Bessel-Gauss beam solution. *Opt. Lett.* **19**, p.427-429 (1994).
- [73] M. I. KAGANOV, I. M. LIFSHITZ & L. V. TANATAROV. Relaxation between Electrons and the Crystalline Lattice. *Sov. Phys. JETP* **4**, p.173-178 (1957).
- [74] A. P. KANAVIN, I. V. SMETANIN, V. A. ISAKOV, YU. V. AFANASIEV, B.N. CHICHKOV, B. WELLEGEHAUSEN, S. NOLTE, C. MÖMMA & A.TÜNNERMANN. Heat transport in metals irradiated by ultrashort laser pulses. *Phys. Rev. B* **57**, p.14698 (1998).
- [75] R. KELLY & A. MIOTELLO. Comments on explosive mechanisms of laser sputtering. *Appl. Surf. Sci.* **96-98**, p.205-215 (1996).
- [76] R. KELLY, A. MIOTELLO. Contribution of vaporization and boiling to thermal-spike sputtering by ions or laser pulses. *Phys. Rev. E* **60**, p.2616-2625 (1999).

- [77] C. KITTEL. Physique de l'état solide. Dunod Université (V), Bordas, Paris (1998).
- [78] J. J. KLOSSIKA, U. GRATZKE, M. VICANEK & G. SIMON. Importance of a finite speed of heat propagation in metals irradiated by femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. B* **54**, p.10277-10279 (1996).
- [79] R. KNORREN & K. H. BENNEMANN. Calculation of the short-time dynamics of the hot electron distribution in noble and transition metals. *Appl. Phys. B* **68**, p.401-404 (1997).
- [80] A. M. KOMASHKO, M. D. FEIT, A. M. RUBENCHIK, M. D. PERRY & P. S. BANKS. Simulation of material removal efficiency with ultrashort laser pulses. *Appl. Phys A* **S69** S95-98 (1999).
- [81] Y. KONDOH, T. YABE, J. MAEHARA, T. NAKAMURA & Y. OGATA. Microscopic and macroscopic simulations for femtosecond-laser-matter interaction by cubic interpolated propagation method. *Phys. Rev. E* **68**, p.066408 (2003).
- [82] W. L. KRUEER. The Physics of Laser Plasma Interactions. Addison-Wesley, Reading, MA (1988).
- [83] R. KUBO & T. NAGAMIYA. Solid state physics. McGraw-Hill Book Co., Inc. New-York (1969).
- [84] L. LANDAU & E. LIFSCHITZ. Cours de Physique Théorique Tome 5 - Physique Statistique. Editions Mir (1961).
- [85] L. LANDAU & E. LIFSCHITZ. Cours de Physique Théorique Tome 6 - Mécanique des Fluides. Editions Mir (1961).
- [86] L. LANDAU & E. LIFSCHITZ. Cours de Physique Théorique Tome 8 - Electrodynamique des milieux continus. Editions Mir (1961).
- [87] S. LAVILLE, F. VIDAL, T. W. JOHNSTON, O. BARTHÉLEMY, M. CHAKER, B. LE DROGOFF, J. MARGOT & M. SABSABI. Fluid modeling of the laser ablation depth as a function of the pulse duration for conductors. *Phys. Rev. E* **66**, p.066415 (2002).
- [88] S. LAVILLE, F. VIDAL, T. W. JOHNSTON, M. CHAKER, B. LE DROGOFF, O. BARTHÉLEMY, J. MARGOT & M. SABSABI. Modeling the time evolution of laser-induced plasmas for various pulse durations and fluences. *Phys. Plasmas* **11**, p.2182-2190 (2004).
- [89] W. E. LAWRENCE & J. W. WILKINS. Electron-electron scattering in the transport coefficient of simple metals. *Phys. Rev. B* **7**, p.2317-2332 (1972).
- [90] W. E. LAWRENCE & J. W. WILKINS. Erratum : Electron-electron scattering in the transport coefficient of simple metals. *Phys. Rev. B* **13**, p.2717 (1976).

- [91] Y. T. LEE & R. M. MORE. An electron conductivity model for dense plasmas. *Phys. Fluids* **27**, p.1273-1286 (1983).
- [92] R. LE HARZIC. Thèse de doctorat. Etude des procédés laser femtoseconde pour le micro-usinage à effets thermiques limités. *Université de Saint-Etienne*, (2002).
- [93] R. LE HARZIC, N. HUOT, E. AUDOUARD, C. JONIN, P. LAPORTE, S. VALETTE, A. FRACZKIEWICZ, R. FORTUNIER. Comparison of heat affected zones due to nanosecond to femtosecond laser pulses using transmission electronic properties. *Appl. Phys. Lett.* **80**, p.3886-3888 (2002).
- [94] R. LE HARZIC, D. BREITLING, M. WEIKERT, S. SOMMER, C. FOEHL, F. DAUSINGER, S. VALETTE, C. DONNET & E. AUDOUARD. Ablation comparison with low and high energy densities for Cu and Al with ultra-short laser pulses. *Appl. Phys. A* **80**, p.1589-1593 (2005).
- [95] R. LE HARZIC, D. BREITLING, M. WEIKERT, S. SOMMER, C. FOEHL, F. DAUSINGER, S. VALETTE, C. DONNET & E. AUDOUARD. Processing of metals by double pulses with short laser pulses. *Appl. Phys. A* **81**, p.1121-1125 (2005).
- [96] I. V. LOMONOSOV, V. E. FORTOV & K. V. KHISHCHENKO. Wide-Range equation of state for large computer codes. *HEDRC report* (1993).
- [97] P. LORAZO, L. J. LEWIS & M. MEUNIER. Short-pulse laser ablation of solids : from phase explosion to fragmentation. *Phys. Rev. Lett.* **91**, p.225502 (2003).
- [98] M. M. MARTYNYUK. Vaporization and boiling of liquid metal in an exploding wire. *Sov. Phys.-Tech. Phys.* **19**, p.793-797 (1974).
- [99] A. G. MATHEWSON & H. P. MYERS. Optical absorption in aluminium and the effect of temperature. *J. Phys. F* **2**, 403 (1972).
- [100] H. M. MILCHBERG, R. R. FREEMAN, S. C. DAVEY & R.M. MORE. Resistivity of a simple metal from room temperature to 10^6 K. *Phys. Rev. Lett.* **61**, p.2364 (1988).
- [101] J. C. MILLER. Optical properties of liquid metals at high temperatures. *Philos. Mag.* **20**, p.1115-1132 (1969).
- [102] A. MIOTELLO & R. KELLY. Laser-induced phase explosion : new physical problems when a condensed phase approaches the thermodynamic critical temperature. *Appl. Phys. A* **S69**, S67-73 (1999).
- [103] C. MOMMA, S. NOLTE, B. N. CHICHKOV, F. V. ALVENSLEBEN & A. TÜNNERMANN. Precise laser ablation with ultrashort pulses. *Appl. Surf. Sci.* **109**, p.15-19 (1997).

- [104] R. M. MORE, K. H. WARREN, D. A. YOUNG & G. B. ZIMMERMAN. A new quotidian equation of state (QEOS) for hot dense matter. *Phys. Fluids* **31**, p.3059-3078 (1988).
- [105] H. MORIKAMI, H. YONEDA, K. UEDA & R. M. MORE. Detection of hydrodynamic expansion in ultrashort pulse laser ellipsometric pump-probe experiments. *Phys. Rev. E* **70**, p.035401(R) (2004).
- [106] A. NG, P. CELLIERS, A. FORSMAN, R. M. MORE, Y. T. LEE, F. PERROT, M. W. C. DHARMA-WARDANA & G. A. RINKER. Reflectivity of intense femtosecond laser pulses from a simple metal. *Phys. Rev. Lett.* **72**, p.3351-3354 (1994).
- [107] A. NG, A. FORSMAN & P. CELLIERS. Heat front propagation in femtosecond-laser-heated solids. *Phys. Rev. E* **51**, p.R5208-R5211 (1995).
- [108] A. NG, P. CELLIERS, G. XU & A. FORSMAN. Electron-ion equilibrium in a strongly coupled plasma. *Phys. Rev. E* **52**, p.4299-4310 (1995).
- [109] A. NG, A. FORSMAN & G. CHIU. Electron thermal conduction waves in a two-temperature, dense plasma. *Phys. Rev. Lett.* **81**, p.2914-2917 (1998).
- [110] C. NGO & H. NGO. Physique statistique à l'équilibre et hors d'équilibre. 2^{ème} édition. Masson, Paris (1995).
- [111] S. NOLTE, C. MOMMA, H. JACOBS, A. TÜNNERMANN, B.N. CHICHKOV, B. WELLEGHAUSEN & H. WELLING. Ablation of metals by ultrashort laser pulses. *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, p.2716 (1997).
- [112] S. OGAWA, H. NAGANO & H. PETEK. Hot-electron dynamics at Cu(100), Cu(110), and Cu(111) surfaces : Comparison of experiment with Fermi-liquid theory. *Phys. Rev. B* **55**, p.10869-10877 (1997).
- [113] E. PALIK. Handbook of Optical Constants in Solids. Academic Press Inc., London (1997).
- [114] D. PEREZ & L. J. LEWIS. Ablation of Solids under Femtosecond Laser Pulses. *Phys. Rev. Lett.* **89**, p.255504 (2002).
- [115] D. PIETROY, O. PARRIAUX, M. FLURY. Mise en forme temporelle d'impulsions laser femtoseconde à l'aide de structures diffractantes résonnantes. Rapport de stage de Master 2^{ème} année. Université de Saint-Etienne (2004).
- [116] D. PINES & P. NOZIERES. The Theory of Quantum Liquids Vol. I : Normal Fermi Liquids. Addison-Wesley, New York, Amsterdam (1966).
- [117] D. W. PRATHER & S. SHI. Formulation and application of the finite-difference time-domain method for the analysis of axially symmetric diffractive optical elements. *J. Opt.*

- Soc. Am. A* **16**, p.1131-1142 (1999).
- [118] S. PREUSS, A. DEMCHUK & M. STUKE. Sub-picosecond UV laser ablation of metals. *Appl. Phys. A* **61**, p.33-37 (1995).
- [119] M. PRIMOUT. Optimization of x-ray conversion efficiency of laser-preformed metallic plasma. *J. X-ray Sc. Tech.* **13**, p.23-26 (2005).
- [120] P. P. PRONKO, S. K. DUTTA, D. DU & R. K. SINGH. Thermophysical effects in laser processing of materials with picosecond and femtosecond pulses. *J. Appl. Phys.* **78**, p.6233-6240 (1995).
- [121] B. RETHFELD. Thèse de doctorat. Technische Universität Braunschweig. Chapitre 3 (1999).
- [122] B. RETHFELD, A. KAISER, M. VIKANEK & G. SIMON. Ultrafast dynamics of nonequilibrium electrons in metals under femtosecond laser irradiation. *Phys. Rev. B* **65**, p.214303 (2002).
- [123] B. RICHARDS & E. WOLF Electromagnetic diffraction in optical systems II. Structure of the image field in an aplanatic system. *Proc. Roy. Soc. A* **253**, p.358-379 (1959).
- [124] J.P. ROMAIN, F. BONNEAU, G. DAYMA, M. BOUSTIE, T. DE RESSÉQUIER & P. COMBIS. Pressure measurements and an analytical model for laser-generated shock waves in solids at low irradiance. *J. Phys. : Condens. Matter* **14**, p.10793 (2002).
- [125] V. I. ROMANCHENKO & G. V. STEPANOV. Dependence of the critical stresses on the loading time parameters during spall in copper, aluminum, and steel. *J. Appl. Mech. Tech. Phys.* **21**, p.555-561 (1981).
- [126] R. ROSEI. Temperature modulation of the optical transitions involving the Fermi surface in Ag : Theory. *Phys. Rev. B* **10**, p.474-483 (1974).
- [127] B. SALLÉ, O. GOBERT, P. MEYNADIER, M. PERDRIX, G. PETITE & A. SEMEROK. Femtosecond and picosecond laser microablation : ablation efficiency and laser microplasma expansion. *Appl. Phys. A : Mater. Sci. Process.* **A69**, Suppl. S381 (1999).
- [128] C. SCHÄFER, H. M. URBASSEK & L. V. ZHIGILEI. Metal ablation by picosecond laser pulses : a hybrid simulation. *Phys. Rev. B* **66**, p.115404 (2002).
- [129] V. SCHMIDT, W. HUSINSKY & G. BETZ. Dynamics of laser deposition and ablation of metals at the threshold on the femtosecond time scale. *Phys. Rev. Lett.* **85**, p.3516-3519 (2000).

- [130] R. W. SCHOENLEIN, W. Z. LIN, J. G. FUJIMOTO & G. L. EESLEY. Femtosecond Studies of Nonequilibrium Electronic Processes in Metals. *Phys. Rev. Lett.* **58**, p.1680-1683 (1987).
- [131] J. SCHWINGER. Thomas-Fermi model : The second correction. *Phys. Rev. Lett.* **24**, p. 2353 (1981).
- [132] J. F. SEELY & E. G. HARRIS. Heating of a Plasma by Multiphoton Inverse Bremsstrahlung. *Phys. Rev. A* **7**, p.1064 (1973).
- [133] A. SEMEROK & C. DUTOUQUET. Ultrashort double pulse laser ablation of metals. *Thin Solid Films* **453-454**, p.501-505 (2004).
- [134] A. SIEGMAN. Lasers. University Science books. Mill Valley (1986).
- [135] P. L. SILVESTRELLI, A. ALAVI, M. PARRINELLO & D. FRENKEL. *Ab initio* molecular dynamics simulation of laser melting of silicon. *Phys. Rev. Lett.* **77**, p.3149-3152 (1996).
- [136] D. Y. SMITH & B. SEGALL. Intraband and interband processes in the infrared spectrum of metallic aluminum. *Phys. Rev. B* **34**, p.5191-5198 (1986).
- [137] K. SOKOLOWSKI-TINTEN, J. BIALKOWSKI, M. BOING, A. CAVALLERI & D. VON DER LINDE. Thermal and nonthermal melting of gallium arsenide after femtosecond laser excitation. *Phys. Rev. B* **58**, p.R11805 (1998).
- [138] K. SOKOLOWSKI-TINTEN, J. BIALKOWSKI, A. CAVALLERI, D. VON DER LINDE, A. OPARIN, J. MEYER-TER-VEHN & S. I. ANISIMOV. Transient states of matter during short pulse laser ablation. *Phys. Rev. Lett.* **81**, p.224-227 (1998).
- [139] L. SPITZER & R. HÄRM. Transport phenomena in a completely ionized gas. *Phys. Rev.* **89**, p.977 (1953).
- [140] M. SPYRIDAKI, E. KOUDOUMAS, P. TZANETAKIS, C. FOTAKISA, R. STOIAN, A. ROSENFELD & I. V. HERTEL. Temporal pulse manipulation and ion generation in ultrafast laser ablation of silicon. *Appl. Phys. Lett.* **83**, p.1474-1476 (1953).
- [141] D. J. STEINBERG, S. G. COCHRAN & M. W. GUINAN. A constitutive model for metals applicable at high-strain-rate. *J. Appl. Phys.* **51**, p.1498-1504 (1980).
- [142] R. STOIAN, A. ROSENFELD, D. ASHKENASI, I. V. HERTEL, N. M. BULGAKOVA & E. E. B. CAMPBELL. Surface charging and impulsive ion ejection during ultrashort pulsed laser ablation. *Phys. Rev. Lett.* **88**, p.097603 (2002).
- [143] R. STOIAN, M. BOYLE, A. THOSS, A. ROSENFELD, G. KORN & I. V. HERTEL. Ultrafast laser material processing using dynamic temporal pulse shaping. Focused on

- Laser Precision Microfabrication (LPM 2002). *RIKEN Rev.* **50**, p.71-76 (2003).
- [144] D. STRICKLAND & G. MOUROU. Compression of amplified chirped optical pulses. *Opt. Commun.* **56**, p.219 (1985).
- [145] B. C. STUART, M. D. FEIT, S. HERMAN, A. M. RUBENCHIK, B. W. SHORE & M. D. PERRY. Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics. *Phys. Rev. B* **53**, p.1749-1761 (1996).
- [146] C.-K. SUN, F. VALLÉE, L. H. ACIOLI, E. P. IPPEN & J. G. FUJIMOTO. Femtosecond investigation of electron thermalization in gold. *Phys. Rev. B* **48**, p.12365-12368 (1993).
- [147] C.-K. SUN, F. VALLÉE, L. H. ACIOLI, E. P. IPPEN & J. G. FUJIMOTO. Femtosecond-tunable measurement of electron thermalization in gold. *Phys. Rev. B* **50**, p.15337-15344 (1994).
- [148] H. TAMURA, T. KOHAMA, K. KONDO & M. YOSHIDA. Femtosecond-laser-induced spallation in aluminum. *J. Appl. Phys.* **89**, p.3520-3522 (2001).
- [149] L. TOLLIER, R. FABBRO & E. BARTNICKI. Study of the laser-driven spallation process by the velocity interferometer system for any reflector interferometry technique. I. Laser-shock characterization. *J. Appl. Phys.* **83**, p.1224 (1998).
- [150] Y. S. TOULOUKIAN & E. H. BUYCO. Specific Heat, Thermophysical Properties of Matter, (New York : Plenum) (1970).
- [151] M. I. TRIBELSKY & S. I. ANISIMOV. Hydrodynamic waves in Regions with smooth loss in convexity of isentropes : General phenomenological theory. *Phys. Rev. Lett.* **86**, p.4037-4040 (2001).
- [152] F. R. TULER & B. M. BUTCHER. A criterion for the time dependence of dynamic fracture. *Int. J. Fract. Mech.* **4**, p.431-437 (1968).
- [153] F. VIDAL, T. W. JOHNSTON, O. BARTHÉLEMY, M. CHAKER, B. LE DROGOF, J. MARGOT & M. SABSABI. Critical-Point Phase Separation in Laser Ablation of Conductors. *Phys. Rev. Lett.* **86**, p.2573-2576 (2001).
- [154] F. VIDAL, T. W. JOHNSTON, J.-C. KIEFFER & F. MARTIN. Spallation induced by ultrashort laser pulses at critical tension. *Phys. Rev. B* **70**, p.184125 (2004).
- [155] C. VOISIN, D. CHRISTOFILOS, P. A. LOUKAKOS, N. DEL FATTI, F. VALLÉE, J. LERMÉ, M. GAUDRY, E. COTTANCIN, M. PELLARIN & M. BROYER. Ultrafast electron-electron scattering and energy exchanges in noble-metal nanoparticles. *Phys. Rev. B* **69**, p.195416 (2004).

- [156] X. Y. WANG, D. M. RIFFE, Y.-S. LEE & M. C. DOWNER. Time-resolved electron temperature measurement in a highly excited gold target using femtosecond thermionic emission. *Phys. Rev. B* **50**, p.8016-8019 (1994).
- [157] X. WANG & X. XU. Thermoelastic wave in metals induced by ultrafast laser pulses. *J. Thermal Stresses* **25**, p.457-473 (2002).
- [158] K. WIDMANN, T. AO, M. E. FOORD, D. F. PRICE, A. D. ELLIS, P. T. SPRINGER & A. NG. Single-state measurement of electrical conductivity of warm dense gold. *Phys. Rev. Lett.* **92**, p.125002 (2004).
- [159] A. E. WYNNE & B. C. STUART. Rate dependence of short-pulse laser ablation of metals in air and vacuum. *Appl. Phys. A* **76**, p.373-378 (2003).
- [160] D. G. YAKOVLEV & V. A. URPIN. Thermal and electrical conductivity in white dwarfs and neutron stars. *Sov. Astron. J.* **24**, p.303 (1981).
- [161] K. S. YEE. Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell's equations in isotropic media. *IEEE Trans. Antennas Propag.* **14**, p.302-307 (1966).
- [162] H. YONEDA, H. MORIKAMI, K. UEDA & R. M. MORE. Ultrashort-pulse laser ellipsometric pump-probe experiments on gold targets. *Phys. Rev. Lett.* **91**, p.075004 (2003).
- [163] K. S. YOUNG WORTH & T. G. BROWN. Focusing of high numerical cylindrical-vector beams. *Opt. Express* **7**, p.77-87 (2000).
- [164] Q. ZHAN & J. R. LEGER. Focus shaping using cylindrical vector beams. *Opt. Express* **10**, p.324-331 (2002).
- [165] I. N. ZAVESTOVSKAYA, Y. V. AFANASIEV, B. N. CHICHKOV, N. N. DEMCHENKO & V. A. ISAKOV. Hydrodynamic regime of laser ablation of metals by ultrashort pulses of low fluence. *Proc. SPIE* **3885**, p.439-445 (2000).
- [166] Y. B. ZEL'DOVICH & Y. P. RAIZER. *Physics of Shock Waves and High-Temperature Hydrodynamic Phenomena* (New York : Academic), p.703 (1967).
- [167] J. M. ZIMAN. *Electrons and Phonons*. Clarendon Press, Oxford (1962).

Theory and simulation of the interaction of ultrashort laser pulses with metallic solids for moderate intensities

Ultrashort laser systems focuses an energy of few microjoules within a pulse of hundred of femtoseconds, so that intensities reach 10^{12} to 10^{15} W/cm². Such ultrashort laser pulses allows accurate metal micro-machining and provides first rate beam parameters for industrial purpose. In this thesis, we propose a theoretical approach to model and simulate the effects induced by such an impulsions.

The ultrafast electronic response drives a strong damage dynamic of the metal lattice. We have developped several models to describe the optical, thermal and hydrodynamical phenomena involved in a material irradiated by a femtosecond laser. Special cares have been devoted to the physical descriptions of the phase transition between the degenerated condensed cold phase and the hot non degenerated plasma. These models have been implemented into a 1-D Lagrangian hydrodynamic code. Comparison between computed ablation rates and experimental results shown good agreements. We also discuss the existence of extreme out of equilibrium states.

An original electrical conductivity model is also set up to take into account the effects of the electron dynamics on the optical properties. Several numerical experiments involving, among others, pump-probe diagnostics, are performed to improve our transport processes (electron-electron and electron-phonon) knowledge in this field. Finally, in order to enhance ablation rate, we used our model to examine temporal pulse shaping effects.

Key words :

Ultrashort laser pulse

Laser-metal interaction

Electron-ion thermal disequilibrium

Ultrafast hydrodynamics

Solid-plasma transition

Transport processes in metals

Electrical conductivity out of equilibrium

Temporal pulse shaping

Théorie et simulation de l'interaction des impulsions laser ultracourtes à flux modéré avec un solide métallique

Les systèmes laser ultracourts concentrent une énergie de quelques microjoules dans une impulsion d'une centaine de femtosecondes, de telle sorte que les intensités atteignent 10^{12} à 10^{15} W/cm². Lors de l'irradiation d'un métal, la matière est éjectée du milieu d'origine avec une très grande précision, ce qui confère au système des qualités indéniables pour des applications industrielles. Dans ce travail, nous avons adopté une démarche théorique en proposant une modélisation et une simulation des effets engendrés par ce type d'impulsion.

La mise en mouvement ultrarapide des électrons libres insufflé une dynamique puissante de destruction du métal. Des modèles optiques, thermiques et hydrodynamiques adaptés, réalisant la transition entre l'état dégénéré de la matière condensée vers un régime plasma chaud non-dégénéré, sont ici développés. Nous les avons insérés dans un code Lagrangien de simulation hydrodynamique. Nous montrons que des états thermodynamiques extrêmes, hors d'équilibre, peuvent être engendrés et nous avons comparé les taux d'ablation obtenus aux résultats d'expérience.

Une conductivité électrique hors d'équilibre est également développée afin de rendre compte des effets produits par la dynamique électronique sur les propriétés d'absorption optique. Plusieurs types d'expériences numériques, impliquant notamment des dispositifs pompe-sonde, sont ensuite exposés afin d'améliorer notre compréhension des processus de transport (électron-électron et électron-phonon) dans ce régime. Nous avons enfin appliqué cette modélisation aux effets produits par une impulsion mise en forme temporellement afin d'optimiser les expériences d'ablation.

Mots clés :

Interaction laser-métal

Impulsions laser ultracourtes

Déséquilibre thermique électron-ion

Hydrodynamique ultrarapide

Transition solide-plasma

Processus de transport dans les métaux

Conductivité électrique hors d'équilibre

Mise en forme temporelle d'impulsion