

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

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

## **1. Introduction**

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

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

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

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

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

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

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

## Chapitre I.

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

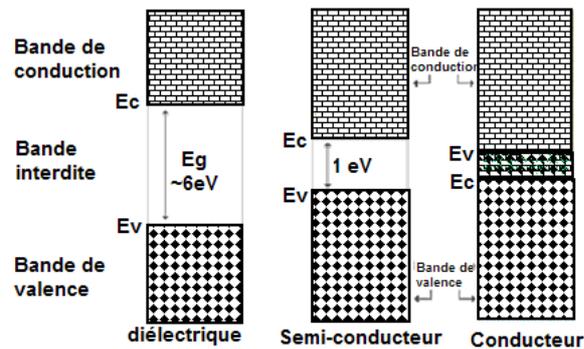


Figure 1.1. Structure de bande pour les différents matériaux : diélectrique, semi-conducteur et métaux, avec les différentes bandes d'énergie.

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

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

## Chapitre I.

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

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

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

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

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

## Chapitre I.

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

## Chapitre I.

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

### 2.1.3. Epaisseur de peau

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

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

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

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

Avec :

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

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

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

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

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

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

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

## Chapitre I.

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

### 2.2.1.2. Excitation des plasmons de surface

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

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

Avec :

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

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

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

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

## Chapitre I.

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

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

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

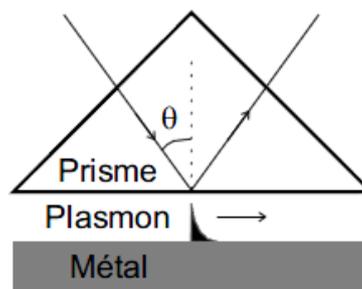


Figure 1.2. Configuration pour l'excitation de plasmons de surface par un prisme [Ott68].

## Chapitre I.

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

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

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

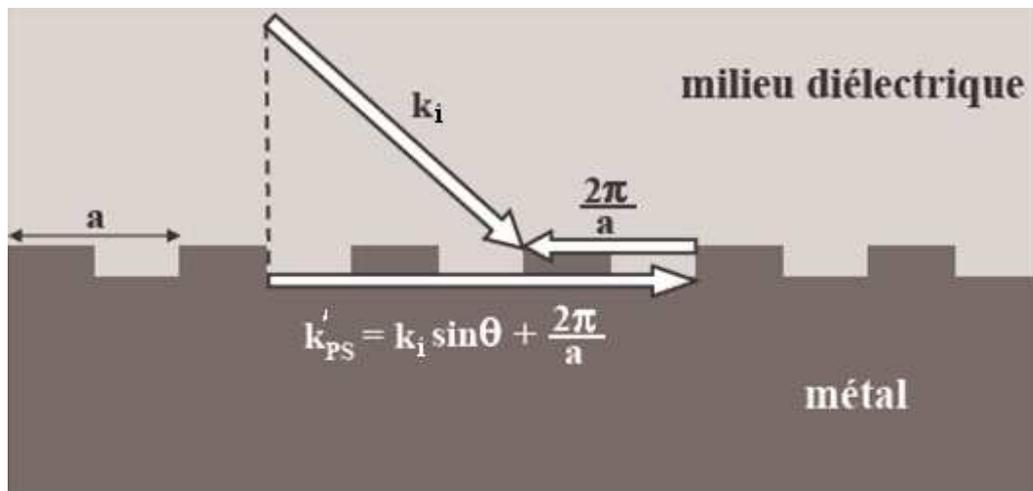


Figure 1.3. Schéma de principe de l'excitation des plasmons de surface à la surface d'un réseau de diffraction [Bon06].

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

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

## Chapitre I.

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

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

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

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

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

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

## Chapitre I.

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

La figure 1.4 ci-dessous représente une illustration de l'évolution temporelle de la température des électrons et du réseau, calculée à partir d'un temps  $t = 0$ , dans le cas d'une cible de cuivre pour une intensité laser de  $I_0 = 5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ . Ces courbes dépendent fortement de la conductivité électronique et de la force de la constante de couplage électrons phonon  $g$ . Plus la valeur de la constante de couplage  $g$  est grande, plus vite est atteint l'équilibre dynamique entre le réseau et le système électronique. Par exemple, dans la Fig. 1.5, on montre une comparaison entre l'évolution des températures des électrons et du réseau, calculée dans les mêmes conditions que la figure 1.4, pour les cibles de Ni et Au. Nous remarquons que, dans le nickel, le temps du transfert d'énergie des électrons vers le réseau est plus rapide que dans l'or, en raison des différentes valeurs de la constante du couplage e-ph dans les deux matériaux. D'après [LZ08] la constante de couplage  $g$  pour le Ni ( $2.10^{17} \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ) est plus grande que celle de l'Au ( $0,5 \cdot 10^{17} \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ).

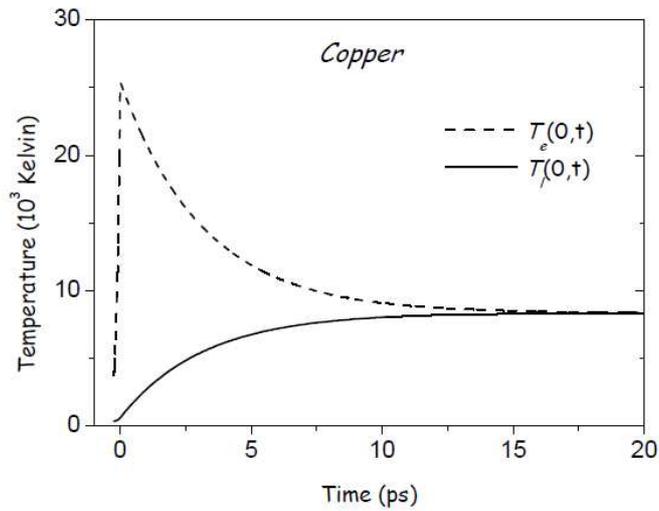


Figure 1.4. Evolution temporelle de la température des électrons ( $T_e$ ) et de réseau ( $T_i$ ), après une irradiation laser femtoseconde de durée d'impulsion de 120 fs centrée à 800 nm avec une intensité de  $I_0=5 \times 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> sur une cible de cuivre [WHG99].

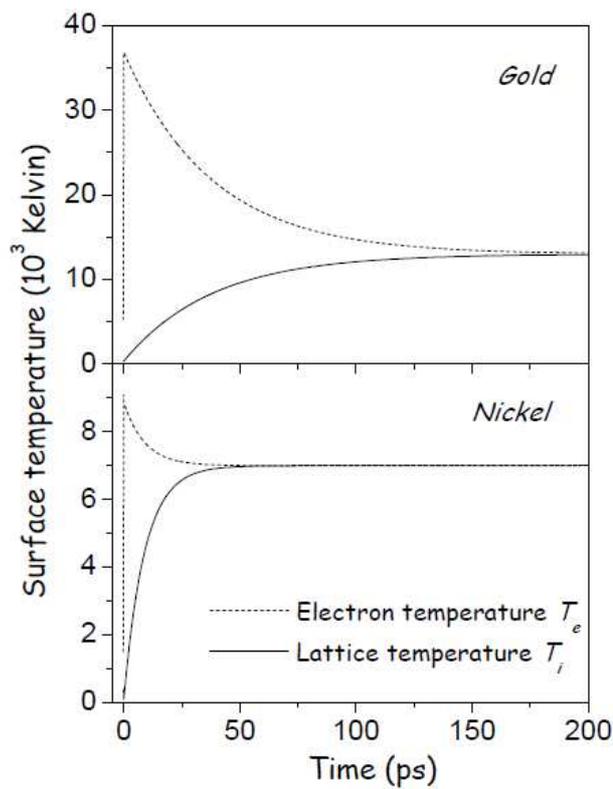


Figure 1.5. Comparaison de l'évolution temporelle des températures des électrons et du réseau entre le Ni et l'Au dans les mêmes conditions que celles utilisées dans la figure 1.4 [WHG99].

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

#### **3.1. Phénoménologie**

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

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

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

## Chapitre I.

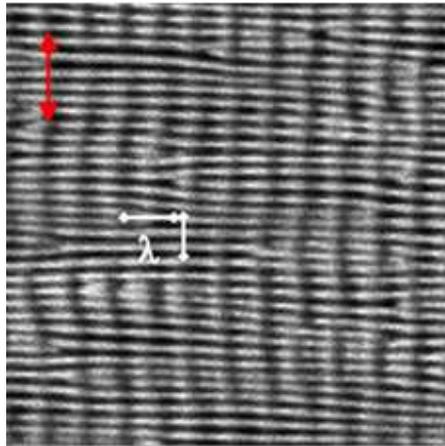


Figure. 1.6. Observation de deux structures LIPSS présentant une orientation différente par rapport à la polarisation (double flèche rouge) après une irradiation laser par  $10^3$  impulsions femtosecondes et  $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> sur une cible de BaF<sub>2</sub> [Rei06].

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

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

## Chapitre I.

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

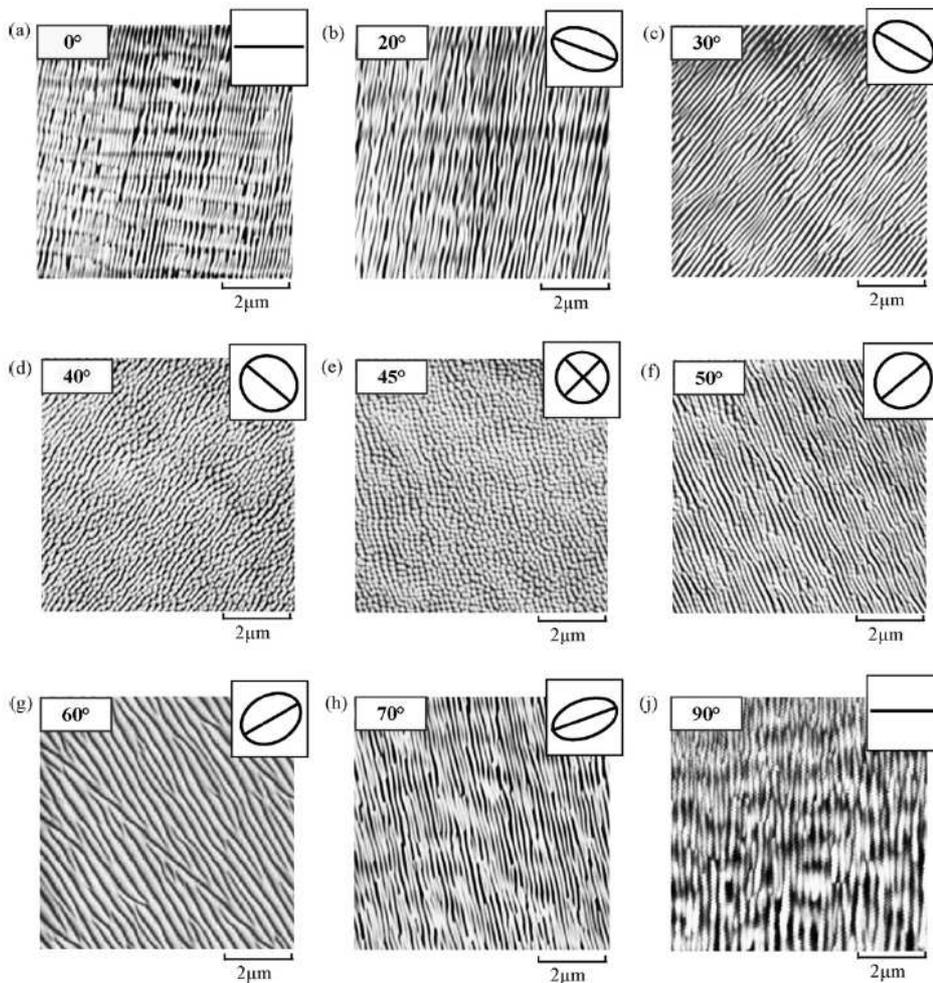


Figure 1.7. Images MEB montrant l'orientation des LIPSS en fonction de la polarisation de faisceau laser. Une irradiation d'une surface de  $\text{CaF}_2$  avec les différentes polarisations de faisceau laser, les images : (a), (b), (c), (d) et (e) produites par l'accumulation de  $3 \cdot 10^3$  impulsions et  $8,3 \text{ W/cm} \cdot 10^{12}$ . Images (g) et (f) ont été produites par l'accumulation de  $5 \cdot 10^3$  impulsions à la même énergie de  $8,3 \text{ W/cm} \cdot 10^{12}$  [VCR07].

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

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

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

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

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

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

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

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

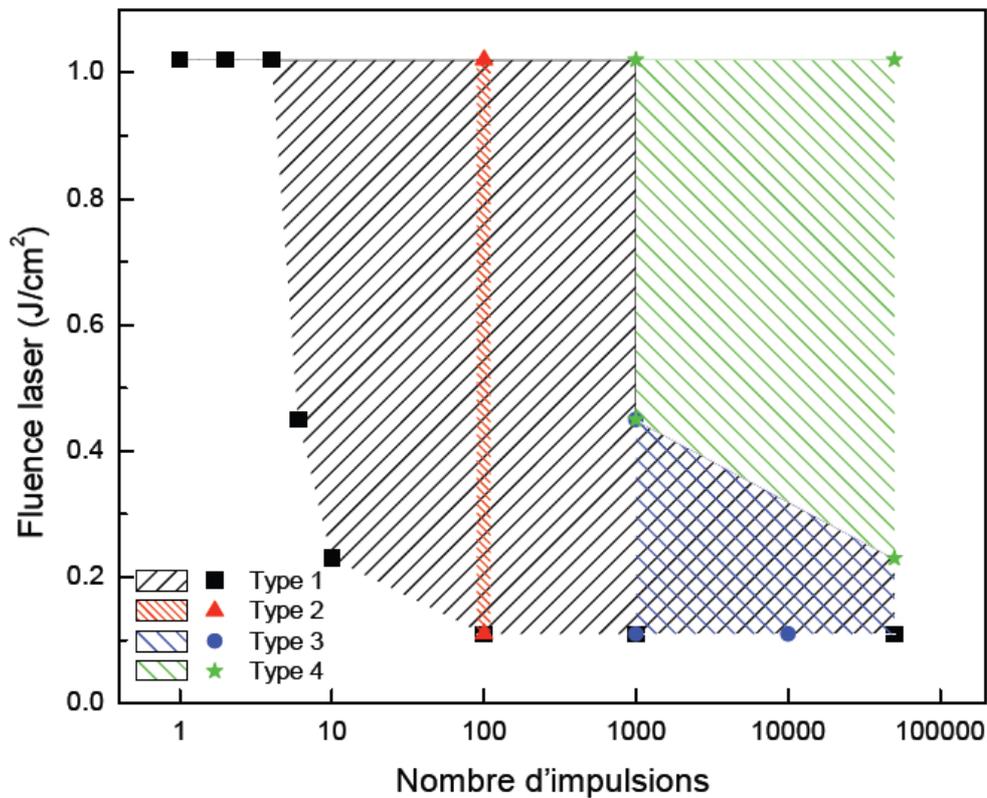


Figure 1.8. Différents types de LIPSS à la surface du cuivre en fonction de la fluence laser et du nombre d'impulsions d'après [Gui09].

## 3.2. Les différents modèles

### 3.2.1. Vue générale

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

## Chapitre I.

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

### **3.2.2. Modèle classique**

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

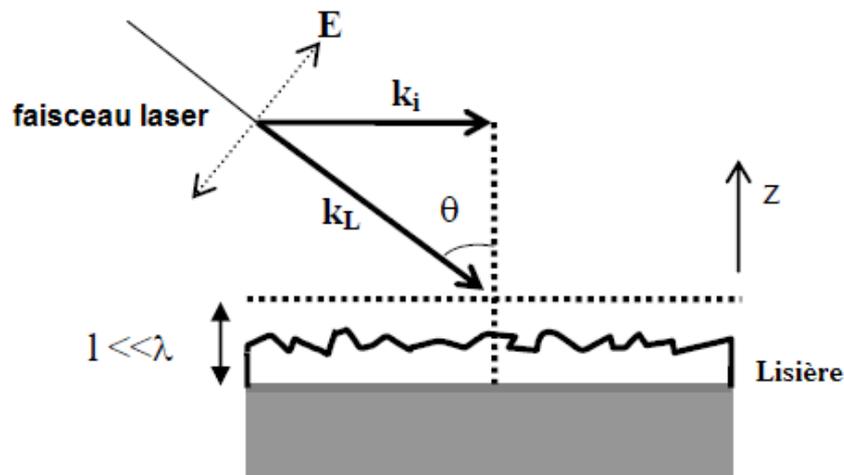


Figure 1.9. Géométrie du faisceau laser incident sur une surface rugueuse [Cos06].

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

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

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

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

## Chapitre I.

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

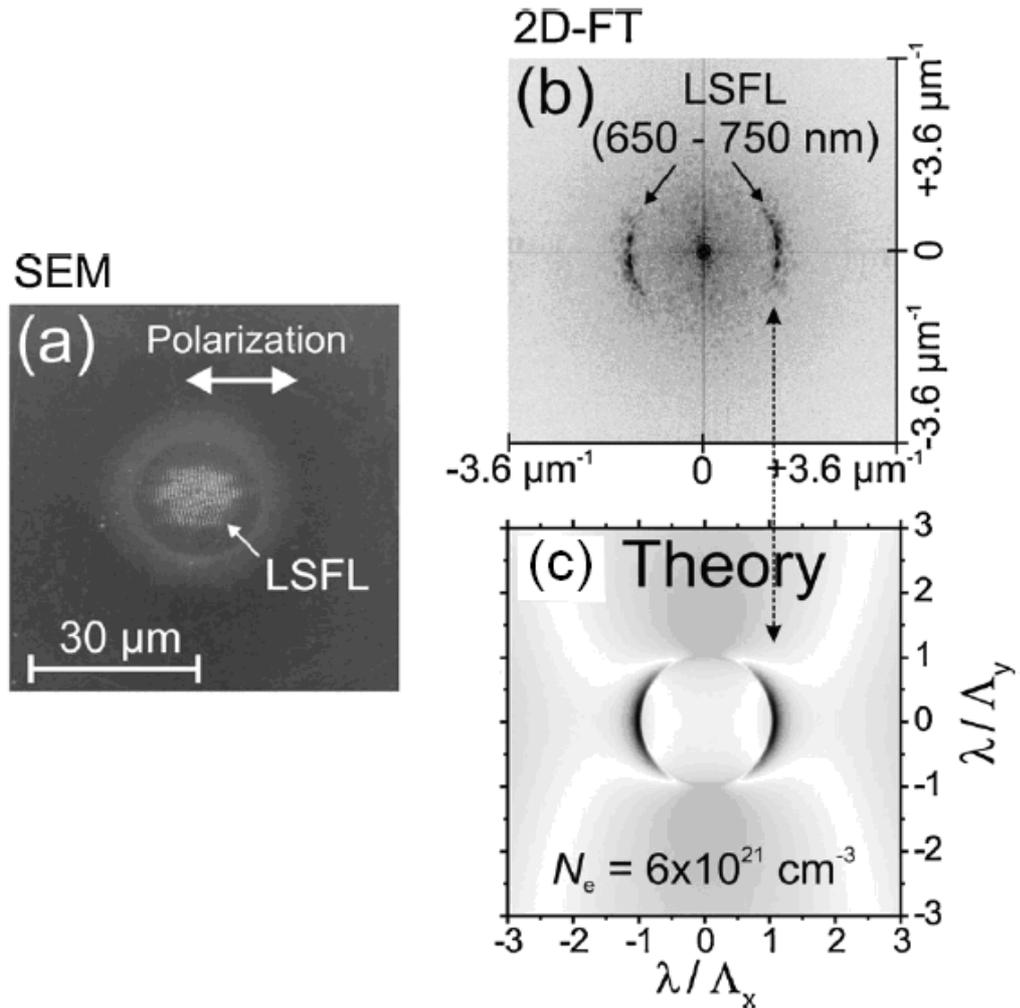


Figure 1.10. Comparaison entre les résultats expérimentaux et les calculs théoriques : (a) irradiation d'une surface de silicium avec 5 impulsions et une fluence de 0,42 J/cm<sup>2</sup>. (b) 2D-FT de l'image (a) montre des LIPSS (LSFL) avec des périodes allant de 650 à 750 nm, (d) efficacité de dépôt de l'énergie  $\eta(k)$  dans l'espace de Fourier selon le modèle de Sipe-Drude pour le silicium [BRK11].

## Chapitre I.

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

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

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

### 3.2.3. Approches dynamiques

#### 3.2.3.1. Modifications transitoires des propriétés optiques

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

## Chapitre I.

ondes électromagnétiques dispersées à la surface du matériau. D'autre part, il apporte une explication concernant les périodes observées et qui sont plus petites que la longueur d'onde du faisceau laser par une modification transitoire des propriétés optiques du matériau [BBK02, DKK04, BMS05, CKR04, CH07, GGS07, WG07, VMG07]. Ce modèle permet donc de prendre en compte la nature extrêmement intense de l'interaction avec l'impulsion ultra-brève, il consiste à appliquer le modèle de Sipe à un matériau dont la constante diélectrique a été modifiée afin de prendre en compte l'effet du gaz électronique excité durant l'impulsion. Cette approche considère que les impulsions femtoseconde intenses peuvent induire un changement de l'indice de réfraction en raison de la génération transitoire des électrons quasi-libres dans la bande de conduction du solide [SL00]. Néanmoins, ce modèle présente quelques limitations car certains résultats restent difficiles à expliquer, c'est le cas par exemple des structures parallèles à la polarisation avec des périodes allant de 1,1 à 2  $\mu\text{m}$  (que l'on appelle dans la littérature « onde de capillarité »), observées lors d'une irradiation à plus haute fluence. Ces structures résultent certainement de l'interaction entre deux ondes de surface se propageant avec un certain angle. Cependant, la question reste ouverte en ce qui concerne les phénomènes menant à la création de ces deux ondes.

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

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

## Chapitre I.

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

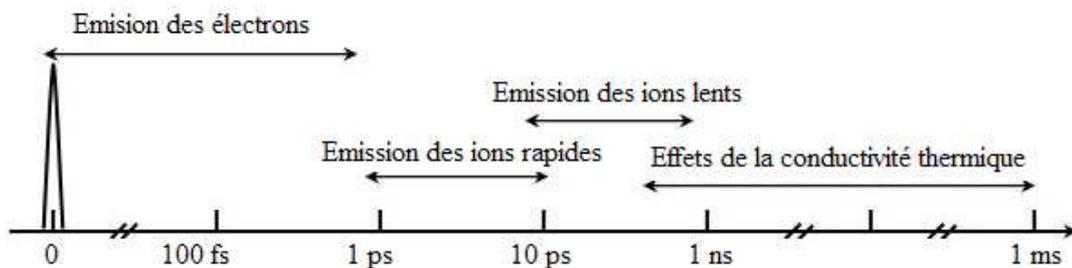


Figure 1.11. Chronologie des différents processus dans le cas d'une interaction laser-diélectrique[Var11].

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

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

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

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

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

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

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

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

## **4. Conclusion**

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