



# Ablation laser et croissance de réseaux de surface

**Mémoire**

**Jean-Luc Déziel**

**Maîtrise en physique**  
Maître ès sciences (M.Sc.)

Québec, Canada

© Jean-Luc Déziel, 2015



# Résumé

La formation des réseaux de surface, ou *laser-induced periodic surface structures* (LIPSSs), à l'aide d'une source laser pulsée est étudiée avec la théorie de Sipe-Drude, d'abord analytiquement, puis avec la méthode numérique *finite-difference time-domain* (FDTD). Les LIPSSs sont des structures nanométriques sinusoïdales pouvant être catégorisées selon leur orientation par rapport à la direction de polarisation du laser incident et en fonction de leur période  $\Lambda$  par rapport à la longueur d'onde du laser  $\lambda$ . Avec la méthode FDTD, nous trouvons, dans une région de l'espace paramétrique jamais explorée, qu'une impulsion laser polarisée linéairement peut interagir avec une surface rugueuse de façon à faire croître des structures bidimensionnelles ayant une période de  $\Lambda \sim \lambda$  dans les orientations parallèle *et* orthogonale à la direction de polarisation.

Par contre, ce modèle ne peut expliquer la forte organisation et régularité des structures dans le domaine spatial, tel qu'observé dans les expériences. Permettre l'auto-organisation des structures avec un mécanisme de rétroaction inter-impulsion est une solution possible afin de simuler la croissance de LIPSSs fortement organisés d'une impulsion laser à la suivante. Récemment proposée, cette méthode utilise un processus d'ablation non physique afin de tenir compte qualitativement de l'éjection de matériau entre deux impulsions laser. Ce nouveau modèle peut reproduire une grande variété de LIPSSs avec une forte régularité spatiale, mais échoue toujours à simuler la croissance de l'amplitude de certains types de structures. Nous suggérons que ces structures restantes peuvent croître en considérant un mécanisme inverse, l'expansion. En combinant ablation et expansion, nous avons simulé avec succès un plus grand nombre de types de LIPSSs.



# Abstract

The formation of laser-induced periodic surface structures (LIPSSs) using pulsed laser source is studied on the basis of the Sipe-Drude theory solved, first analytically, then with a finite-difference time-domain (FDTD) scheme. LIPSSs consist of wavy nanometric structures and can be categorized depending on their orientation with respect to the incident laser polarization and their periodicity  $\Lambda$  with respect to the incident laser wavelength  $\lambda$ . With our FDTD solver, we find, in as yet unexplored regions of parameter space, that a linearly polarized laser pulse can interact with a rough surface such that bidimensional structures could grow with both parallel and perpendicular periodicity of  $\Lambda \sim \lambda$ .

However, this theory cannot predict the strong organization and regularity in the space domain, as observed in the experiments. Allowing self-organization in the model with an inter-pulse feedback mechanism is a possible solution to simulate the growth of strongly organized LIPSSs from one laser pulse to the next. This recently proposed method uses a non-physical ablation process to qualitatively account for material removal between two laser pulses. This new model can reproduce a large variety of LIPSSs with a strong spatial regularity, but still fails to simulate amplitude growth of some of the structures. We suggest that those remaining structures can grow by considering an inverse mechanism, an expansion process. By combining ablation and expansion mechanisms, we have successfully simulated the growth of a large class of LIPSSs.



# Table des matières

<b>Résumé</b>	iii
<b>Abstract</b>	v
<b>Table des matières</b>	vii
<b>Liste des figures</b>	ix
<b>Liste des contributions</b>	xiii
<b>Remerciements</b>	xvii
<b>Introduction</b>	1
<b>1 Mécanismes d'absorption et relaxation thermique</b>	5
1.1 Absorption linéaire . . . . .	5
1.1.1 Méthode analytique et fonction de Green . . . . .	6
1.1.2 Application à une impulsion laser gaussienne . . . . .	7
1.1.3 Comparaison avec la méthode des différences finies . . . . .	12
1.2 Absorption non linéaire et génération de plasma . . . . .	15
1.2.1 Modèle de Drude . . . . .	16
1.2.2 Compétition entre ionisation par impact et multiphotonique . . . . .	17
1.3 Interaction entre une impulsion laser et le plasma généré . . . . .	19
1.3.1 Construction du modèle . . . . .	19
1.3.2 Solutions numériques . . . . .	22
<b>2 Des premières expériences à la théorie de Sipe-Drude</b>	27
2.1 Classification des réseaux de surface . . . . .	27
2.2 Le problème de Sipe . . . . .	30
2.2.1 Solution analytique. . . . .	31
2.2.2 Contribution du plasma . . . . .	35
<b>3 Interactions électrodynamiques de surface</b>	41
3.1 Discrétisation des équations de Maxwell . . . . .	41
3.1.1 Algorithme de Yee . . . . .	43
3.2 Application au problème de Sipe . . . . .	46
3.2.1 Domaine de simulation . . . . .	47
3.2.2 Fonctions d'efficacité . . . . .	49
3.3 Effet collectif d'inhomogénéités uniques . . . . .	53

3.3.1	Excitations de surface . . . . .	54
3.3.2	Méthode alternative de calcul des fonctions d'efficacité . . . . .	56
3.3.3	Entre inhomogénéité unique et rugosité . . . . .	58
<b>4</b>	<b>Croissance des réseaux de surface</b>	<b>61</b>
4.1	Auto-organisation . . . . .	61
4.2	Croissance inter-impulsion . . . . .	63
4.2.1	Régime d'ablation . . . . .	63
4.2.2	Rétroaction constructive et destructive . . . . .	65
4.2.3	Régime d'expansion . . . . .	67
	<b>Conclusion</b>	<b>73</b>
	<b>A Source thermique et fonction de Green</b>	<b>77</b>
	<b>B Impulsion gaussienne et génération de plasma</b>	<b>79</b>
	<b>C Dynamique de la phase liquide</b>	<b>83</b>
C.1	Équations de Navier-Stokes . . . . .	84
C.2	Domaine libre et méthode Marker and Cell . . . . .	85
	<b>Bibliographie</b>	<b>93</b>

# Liste des figures

0.1	Réseaux de surface sur verre de chalcogénure. . . . .	2
1.1	Solution analytique de la diffusion thermique causée par une impulsion laser gaussienne. . . . .	12
1.2	Solution numérique de la diffusion thermique causée par une impulsion laser gaussienne. . . . .	14
1.3	Comparaison entre les solutions analytique et numérique. . . . .	15
1.4	Schéma d'une ionisation par impact. . . . .	17
1.5	Schéma d'une ionisation à deux photons. . . . .	18
1.6	Rapport entre les probabilités d'ionisation par impact et multiphotonique en fonction de l'intensité du champ. . . . .	19
1.7	Dépendance temporelle de l'ionisation par impact et multiphotonique. . . . .	20
1.8	Intensité d'une impulsion laser ( $t_0 = 20$ fs, $F = 0.0535$ J/cm $^2$ ) se propageant dans un milieu ionisable. . . . .	22
1.9	Plasma généré par une impulsion laser ( $t_0 = 20$ fs, $F = 0.0535$ J/cm $^2$ ). . . . .	23
1.10	Densité maximale du plasma en fonction de la fluence du laser. . . . .	24
1.11	Influence du plasma sur les propriétés optiques du matériau en fonction de la fluence du laser. . . . .	24
1.12	Changement de la réflectivité du matériau en fonction de la fluence du laser. . . . .	25
2.1	Géométrie du problème de Sipe. . . . .	31
2.2	Solution analytique de la fonction d'efficacité typique d'un métal (aluminium). . . . .	34
2.3	Solution analytique de la fonction d'efficacité typique d'un diélectrique ou semi-conducteur (silicium). . . . .	35
2.4	Changement des propriétés optiques du silicium en fonction de la fréquence du plasma, calculés avec le modèle de Drude. . . . .	36
2.5	Théorie de Sipe-Drude et ses solutions pour le silicium à diverses fréquences de plasma. . . . .	37
2.6	Solutions de la théorie de Sipe-Drude pour les structures alignées orthogonalement au sens de polarisation du laser. . . . .	38
2.7	Solutions de la théorie de Sipe-Drude pour les structures alignées parallèlement au sens de polarisation du laser. . . . .	38
3.1	Comparaison entre une grille normale et une grille décalée en deux dimensions. . . . .	43
3.2	Cellule de Yee utilisée dans les calculs FDTD. . . . .	44
3.3	Géométrie utilisée afin de résoudre numériquement le problème de Sipe avec la méthode FDTD. . . . .	48

3.4	Parties réelles et imaginaires des indices de réfractions calculées avec le modèle de Drude pour les deux valeurs de fréquences de collision utilisées dans les calculs FDTD. . . . .	50
3.5	Solutions numériques des fonctions d'efficacité. . . . .	51
3.6	Solutions numériques des fonctions d'efficacité à haute fréquence de collision. . .	52
3.7	Solutions numériques des fonctions d'efficacité à basse fréquence de collision. . .	53
3.8	Perturbation du champ autour d'une seule inhomogénéité de surface. . . . .	54
3.9	Schéma de la production de SPPs autour d'une inhomogénéité de surface. . . . .	55
3.10	Fonction d'efficacité calculée numériquement et en profondeur prédisant des larges structures parallèles au sens de polarisation du laser. . . . .	56
3.11	Solutions numériques de fonctions d'efficacité obtenues avec une méthode alternative très simple et rapide. . . . .	57
3.12	Vérification de la dépendance en profondeur de la méthode alternative de calcul des fonctions d'efficacité. . . . .	58
3.13	Construction graduelle d'une rugosité de surface à partir d'inhomogénéités et l'effet sur le champ dans le cas d'un diélectrique. . . . .	59
3.14	Construction graduelle d'une rugosité de surface à partir d'inhomogénéités et l'effet sur le champ dans le cas d'un métal ou un diélectrique fortement ionisé. .	60
4.1	Schéma de la méthode de rétroaction inter-impulsion par ablation. . . . .	63
4.2	Croissance de structures de type-s sur 9 cycles de rétroaction inter-impulsion par ablation. . . . .	64
4.3	Croissance de structures de type-s sur 9 cycles de rétroaction inter-impulsion par ablation dans l'espace de Fourier. . . . .	64
4.4	Croissance de structures de type-r sur 9 cycles de rétroaction inter-impulsion par ablation. . . . .	65
4.5	Croissance de structures de type-r sur 9 cycles de rétroaction inter-impulsion par ablation dans l'espace de Fourier. . . . .	65
4.6	Échec de la croissance des structures de type-d avec le mécanisme d'ablation. .	66
4.7	Schéma de la méthode de rétroaction inter-impulsion par expansion. . . . .	67
4.8	Rétroaction constructive ou destructive pour un champ incident se déposant entre les maxima de la surface. . . . .	68
4.9	Rétroaction constructive ou destructive pour un champ incident se déposant aux les maxima de la surface. . . . .	68
4.10	Croissance de structures de type-d sur 4 cycles de rétroaction inter-impulsion par expansion. . . . .	69
4.11	Croissance de structures de type-d sur 4 cycles de rétroaction inter-impulsion par expansion dans l'espace de Fourier. . . . .	69
4.12	Croissance de structures de type-d sur 9 cycles de rétroaction inter-impulsion par expansion sur un métal ou un diélectrique fortement ionisé. . . . .	70
4.13	Croissance de structures de type-d sur 9 cycles de rétroaction inter-impulsion par expansion sur un métal ou un diélectrique fortement ionisé dans l'espace de Fourier. . . . .	70
4.14	Schéma qualitatif des différentes régions paramétriques de la méthode de rétroaction inter-impulsion. . . . .	71
B.1	Intensité d'une impulsion laser ( $t_0 = 20$ ns, $F = 0.088$ J/cm <sup>2</sup> ) se propageant dans un milieu ionisable. . . . .	80

B.2	Plasma généré par une impulsion laser ( $t_0 = 20$ ns, $F = 0.088$ J/cm $^2$ ). . . . .	80
B.3	Intensité d'une impulsion laser ( $t_0 = 5$ fs, $F = 0.034$ J/cm $^2$ ) se propageant dans un milieu ionisable. . . . .	81
B.4	Plasma généré par une impulsion laser ( $t_0 = 5$ fs, $F = 0.034$ J/cm $^2$ ). . . . .	81
B.5	Intensité d'une impulsion laser ( $t_0 = 20$ fs, $F = 0.1$ J/cm $^2$ ) se propageant dans un milieu ionisable. . . . .	82
B.6	Plasma généré par une impulsion laser ( $t_0 = 20$ fs, $F = 0.1$ J/cm $^2$ ). . . . .	82
C.1	Schéma d'une grille utilisée avec la méthode Marker and Cells. . . . .	85
C.2	Cellule bidimensionnelle de la grille décalée utilisée pour la méthode Marker and Cells. . . . .	86
C.3	Conditions frontières des murs rigides. . . . .	87
C.4	Conditions frontières libres. . . . .	88
C.5	Exemple qualitatif du déplacement des marqueurs. . . . .	89
C.6	Résumé des étapes de la méthode Marker and Cells. . . . .	90
C.7	Goutte tombant sous l'effet de la gravité dans un bassin. . . . .	91
C.8	Volume total du fluide lors de la simulation de la goutte qui tombe dans un bassin. . . . .	92



# Liste des contributions

## Articles avec comité de lecture

1. **Jean-Luc Déziel**, Joey Dumont, Denis Gagnon, and Louis J. Dubé,  
Sandra H. Messaddeq, and Younès Messaddeq  
*Toward the formation of crossed laser-induced periodic surface structures*  
Journal of Optics , Vol. **17**, pp. 075405 (2015)
2. Denis Gagnon, Joey Dumont, **Jean-Luc Déziel** and Louis J. Dubé  
*Optimization of integrated polarization filters*  
Optics Letters , Vol. **39**, pp. 5768-5771 (2014)
3. Denis Gagnon, Joey Dumont, **Jean-Luc Déziel** and Louis J. Dubé  
*Ab initio investigation of lasing thresholds in photonic molecules*  
Journal of Optical Society of America B , Vol. **31**, pp. 1867-1873 (2014)

## Articles en préparation

1. **Jean-Luc Déziel**, Joey Dumont, Denis Gagnon, and Louis J. Dubé, Sandra H. Messaddeq, and Younès Messaddeq  
*Constructive feedback for the growth of laser-induced periodic surface structures*  
Soumis à Physica Status Solidi C
2. Sandra H. Messaddeq, **Jean-Luc Déziel**, Antoine Dumont, Mohammed El-Amraoui, Ali Saliminia, Réal Vallée, and Younès Messaddeq  
*Formation of crossed laser-induced periodic surface structures on chalcogenide glass using fs-laser*, En préparation

## Conférences internationales

1. **Jean-Luc Déziel**<sup>1</sup>, Joey Dumont, Denis Gagnon, and Louis J. Dubé,  
Sandra H. Messaddeq, and Younès Messaddeq  
*Growth of laser-induced periodic surface structures : On the dielectric behavior of metals*  
Excon 2015
2. **Jean-Luc Déziel**<sup>2</sup>, Joey Dumont, Denis Gagnon, and Louis J. Dubé,  
Sandra H. Messaddeq, and Younès Messaddeq  
*Growth of laser-induced nanostructures*  
Photonics North 2015
3. Denis Gagnon, Joey Dumont, **Jean-Luc Déziel**, and Louis J. Dubé<sup>3</sup>  
*Adding SALT to coupled microcavities : the making of active photonic molecule lasers*  
IEEE Proceedings of the 16th International Conference on Transparent Optical Networks  
(Icton 2014)

---

1. Présentation orale  
2. présentation d'une affiche  
3. Présentation orale

Look ahead and see.  
There are still so many borders  
we could cross.

---

Ayreon



# Remerciements

Ces deux années à travailler sur ce projet ne m'ont jamais paru comme une tâche, ou comme un simple travail à accomplir. Tout ce que j'ai fait, c'est suivre une passion qui m'a été insufflée par d'autres passionnés et j'espère pouvoir rendre cela aux personnes que je côtoierai tout au long de mon parcours. Ainsi, je tiens à saisir l'occasion pour remercier toutes ces personnes qui n'ont pas seulement rendu ce projet possible, mais également agréable et captivant.

Tout d'abord, à mon directeur de projet, Louis J. Dubé, merci de m'avoir accueilli au sein de votre équipe. Vous avez été d'une aide irremplaçable même quand nous voguions tous deux dans des eaux inconnues. Vous avez su être patient quand je disais n'importe quoi et vos talents de communicateur m'ont aidé à ne pas le faire n'importe comment. Merci également à mon codirecteur Younès Messaddeq, pour votre confiance, votre bonne humeur débordante et votre support.

Denis Gagnon et Joey Dumont, les gars de lumière, vous avez été d'une aide inestimable. Je garde d'excellents souvenirs de nos nombreuses discussions agrémentées de divers breuvages (qui stimulent l'esprit ou le brouillent, selon les occasions). Je vous remercie pour toute la musique que vous m'avez fait découvrir, tout le temps que vous avez passé à déboguer mon « maudit ordinateur » et tout ce que vous m'avez appris. Étant le p'tit nouveau, je n'ai peut-être pas pu vous en apprendre autant, mais j'espère avoir été un bon élève. Aux autres membres de l'équipe, Jean-Gabriel Young, Edward Laurence et Guillaume St-Onge, ce fut un plaisir de venir vous déranger dans vos bureaux. Je salue également Antoine Allard et Laurent Hébert-Dufresne dont j'ai eu le privilège de croiser leur chemin au sein de cette équipe.

J'en profite pour souhaiter à deux de mes amis du baccalauréat, Pascal Hogan et Marianne Girard, la meilleure des chances pour la suite de leurs études. J'espère que l'on se reverra souvent, malgré le petit cours d'eau qui va nous séparer.

En dehors du milieu académique, tous mes amis de longue date ont été d'une grande importance durant les dernières années. Je garde un lien particulier avec mes *bandmates* : Anaël, Alex, Pascale, Vincent, Éric, François et Émile pour toutes ces expériences musicales dans des locaux humides et étouffants.

Finalement, je remercie ma famille qui m'a toujours supporté sans compromis dans tous mes

projets. Merci à ma mère, Hélène, et à Réjean pour m'avoir donné le goût de voir le monde. Bonne chance à mes soeurs, Julie et Sophie, pour leurs projets ambitieux et, d'ailleurs, merci Sophie pour ton hospitalité (futon) les nombreuses fois où j'en ai eu besoin. Et encore une fois, merci à mon père, Jean-Pierre, pour ton appui.

# Introduction

Ce projet est né de l'observation de nanostructures complexes et fortement organisées à la surface de verres de chalcogénure. Ces structures, les réseaux de surface, ou *laser-induced periodic surface structures* (LIPSSs) se forment après une exposition à une ou plusieurs impulsions laser intenses et existent dans une grande variété de morphologies [1, 2, 3]. Chacune de ces variantes est une trace, une signature d'un phénomène propre à chaque cas se produisant lors d'une interaction très intense et très brève entre matière et rayonnement.

On réalise en parcourant la littérature, que le sujet est très vaste. Les LIPSSs peuvent apparaître sur des verres [4], des cristaux [5], des polymères [6, 7] et sur des matériaux aux propriétés optiques très différentes, soient les métaux, les semi-conducteurs ou les diélectriques [8]. Jusqu'à preuve du contraire, des LIPSSs peuvent être formés sur tout matériau solide en l'irradiant d'impulsions laser si les propriétés du laser sont correctement choisies [9]. C'est en utilisant différents matériaux et propriétés du laser (intensité, durée d'impulsion, nombre d'impulsions, longueur d'onde, etc.) que l'on peut fabriquer les différentes variétés de LIPSSs. C'est cet aspect universel des LIPSSs qui a motivé l'approche générale utilisée lors de ces travaux.

Les réseaux de surfaces sont habituellement caractérisés par leur périodicité  $\Lambda$  par rapport à la longueur d'onde du faisceau incident  $\lambda$ . Ils sont aussi différenciables par leur orientation par rapport à la direction de polarisation du laser incident. Certaines structures sont alignées parallèlement à la polarisation et d'autres, perpendiculairement. Tourner la direction de polarisation d'un certain angle va faire subir la même rotation aux LIPSSs. Sachant que les réseaux de surface dépendent directement de la polarisation et de la longueur d'onde du laser, il devient alors naturel d'adopter une approche électromagnétique afin d'expliquer leur formation. Mais avant de se pencher sur la théorie, un exemple expérimental s'impose.

Afin de mieux illustrer ce que sont les LIPSSs, voici le cas particulier qui a initié ce projet, réalisé avec 10 impulsions de longueur d'onde  $\lambda = 800$  nm, de durée  $\tau = 100$  fs et un taux de répétition  $\nu = 1$  kHz sur un verre de  $\text{As}_2\text{S}_3$ . Les fluences appliquées  $F$ , définies comme l'énergie par surface en  $\text{J}/\text{cm}^2$  sont près du seuil d'ablation  $F_{\text{seuil}} = 0.11 \text{ J}/\text{cm}^2$ . Les réseaux de surface obtenus sont montrés à la figure 0.1 [10].

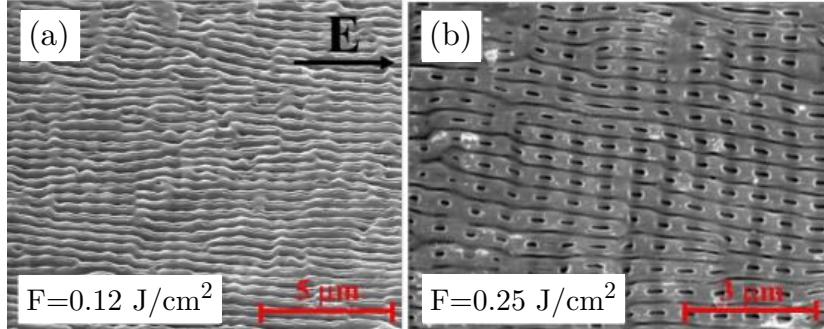


FIGURE 0.1: Images prises au microscope électronique de la surface d'un verre de chalcogénure ( $\text{As}_2\text{S}_3$ ) après avoir été irradié de 10 impulsions laser de fluence  $F = 0.12 \text{ J/cm}^2$  (a) et  $F = 0.25 \text{ J/cm}^2$  (b). L'orientation de la polarisation du laser est indiquée en (a).

La figure 0.1 montre, en (a), des structures alignées parallèlement à la polarisation du laser et, en (b), une combinaison de structures linéaires et parallèles au sens de polarisation et de structures ponctuelles (*nanovoids*) alignées orthogonalement. Le projet initial était alors d'expliquer la forme précise de ces structures et leur évolution suivant l'augmentation de la fluence du laser. Mais toujours dans un soucis de généralité, les calculs n'ont pas été restreints à ce cas particulier.

Plusieurs applications existent, le plus souvent afin de traiter une surface et lui donner des propriétés optiques particulières. On peut changer la couleur d'un matériau [11] ou son absorbance [12] par exemple. On peut également rendre une surface superhydrophobe [13] ou inscrire des données dans un matériau [14]. Il y a aussi un fort intérêt théorique, car chaque variété de structures est la signature d'un phénomène se produisant dans des conditions d'interactions extrêmes. L'étude des réseaux de surface ouvre une fenêtre vers ces phénomènes intenses et rapides.

Tel que mentionné plus haut, une approche électromagnétique a été adoptée. L'idée principale est que l'énergie lumineuse ne se dépose pas uniformément à la surface de la cible, entraînant ainsi une ablation non uniforme de la surface. Le profil d'énergie est alors inscrit dans la forme de la surface. Le défi est de déterminer la forme que prend le champ immédiatement après avoir interagi avec la surface d'un matériau, en fonction de ses propriétés optiques. Les chapitres 2 et 3 s'attaquent à cet aspect, d'abord avec une méthode analytique, la théorie de Sipe-Drude [15, 16], puis avec une méthode numérique. Les propriétés optiques de la cible et du plasma généré durant l'irradiation laser sont le sujet de la seconde partie du chapitre 1.

Le chapitre 4 s'intéresse au lien entre la forme du champ durant l'irradiation laser et la forme finale de la surface. Deux processus de modification de la forme de la surface sont utilisés, mais tous deux sont qualitatifs et non physiques. Bien que les résultats permettent d'observer la croissance de réseaux de surface et sont plutôt convaincants, nous avons débuté l'étude et posé

les bases théoriques d'un mécanisme quantitatif et physique de transport de matériau. Vue l'importance de la présence d'une phase liquide lors de la formation des réseaux de surface [17, 18, 19], quelques aspects thermiques sont abordés au chapitre 1 et la dynamique des fluides est abordée à l'annexe C. Toutefois ces deux aspects débordent largement du cadre de ce mémoire et n'ont pas encore été utilisés dans le traitement des réseaux de surface.

Voici une description plus détaillée du contenu des quatre chapitres.

**Le premier chapitre, *Mécanismes d'absorption et relaxation thermique*,** rassemble plusieurs éléments touchant les interactions entre matière et rayonnement étudiés tout au long du projet. Ce chapitre est à part des autres, car il n'aborde pas encore les réseaux de surface, mais sert plutôt à préparer le terrain en introduisant certaines méthodes analytiques ou numériques pertinentes. L'étude des mécanismes d'ionisation permet également d'obtenir les ordres de grandeur de certains éléments importants pour les autres chapitres, tels la densité d'ionisation, la dépendance en profondeur, la variation des propriétés optiques lors de l'irradiation, les temps caractéristiques, etc. Ainsi, on peut avoir une vision plus globale du problème et s'assurer que les modèles construits dans les chapitres suivants sont réalistes et raisonnables.

**Le second chapitre, *Des premières expériences à la théorie de Sipe-Drude*,** s'attaque enfin aux réseaux de surface. Une classification des différentes variations de LIPSSs observées expérimentalement est d'abord introduite. Ensuite, les solutions des équations de Maxwell pour une onde plane incidente sur une surface dont la rugosité est prise en compte sont présentées. Cette théorie, développée par Sipe *et al.* [15] et couplée au modèle de Drude par Bonse *et al.* [16] est ensuite comparée aux résultats expérimentaux. Il est démontré que l'énergie d'une onde plane est déposée avec des fréquences préférentielles sous une surface rugueuse permettant d'expliquer l'ablation inhomogène et périodique responsable d'une surface finale ayant cette même forme périodique. Les succès et limites de cette méthode analytique sont finalement discutés.

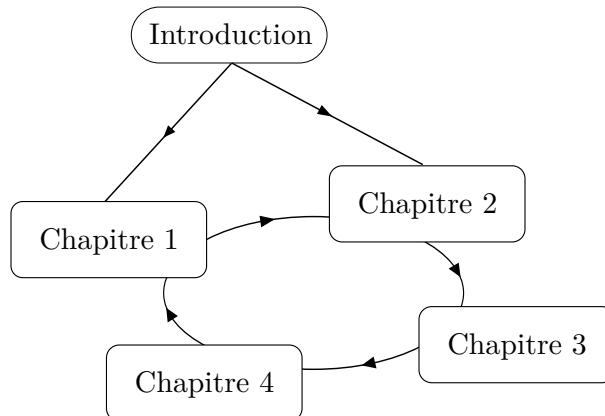
**Le troisième chapitre, *Interactions électrodynamiques de surface*,** introduit une méthode numérique, *finite-difference time-domain* (FDTD) [20, 21], qui permet de pallier aux nombreuses limites des solutions analytiques du chapitre 2. Cette méthode numérique est ensuite appliquée au problème de l'interaction entre une onde plane incidente et une surface rugueuse [22]. Les résultats présentés dans ce chapitre sont la première contribution originale de ce projet et ont été récemment publiés sous le titre *Toward the formation of crossed laser-induced periodic surface structures* dans Journal of Optics [23]. L'évolution entre des fines structures parallèles à la direction de polarisation, semblables à celles de la figure 0.1(a), vers des structures d'une plus grande période et bidimensionnelles, semblables à celles de la figure 0.1(b), est reproduite par la forme du champ électromagnétique sous la surface rugueuse.

Ce chapitre étudie également les interactions entre le champ incident et une inhomogénéité de surface unique. Deux résultats intéressants en sont tirés. Premièrement, on peut reproduire

les résultats de l'expérience analogue, soit l'irradiation d'une surface très lisse sur laquelle une nanoparticule a été déposée [16, 19]. La surface lisse empêche la formation de LIPSSs, car une onde plane incidente conserve sa symétrie en la traversant et l'ablation est alors constante. La nanoparticule brise cette symétrie localement et la forme de la perturbation peut être reproduite dans les simulations. Deuxièmement, la comparaison entre l'interaction de l'onde incidente avec un grand nombre d'inhomogénéités (rugosité de surface) ou une seule inhomogénéité, dans l'espace de Fourier, montre peu de différences, sinon que la seconde méthode est beaucoup plus rapide et ses résultats plus précis.

**Le dernier chapitre, *Croissance des réseaux de surface*,** ajoute les notions de rétroaction et d'auto-organisation au modèle développé au chapitre 3. En appliquant un mécanisme permettant à la forme de la surface d'être modifiée en fonction des variations locales du champ, on peut tenir compte de la rétroaction entre plusieurs impulsions laser et ainsi observer leur croissance d'une impulsion à la suivante. Le champ a un effet sur la surface et cette nouvelle surface a un effet sur le champ de l'impulsion suivante. La seconde contribution originale de ce projet est la distinction entre rétroaction constructive et destructive. Grâce à cet ajout, la croissance d'un plus grand nombre de structures peut être simulée.

Finalement, les conclusions et les perspectives sont réunies après les quatre chapitres principaux. La perspective la plus prometteuse, une suite logique au projet, retourne directement sur les travaux du premier chapitre, soit l'utilisation des mécanismes d'ionisation non linéaires afin de permettre au modèle une forme de rétroaction dynamique dite intra-impulsion, en plus de l'inter-impulsion traitée au chapitre 4. La lecture de ce document peut alors suivre deux chemins différents. Il y a l'ordre chronologique normal si le phénomène dans son ensemble intéresse le lecteur, mais il est possible de commencer directement au chapitre 2 si le lecteur s'intéresse principalement aux réseaux de surface. Le premier chapitre peut ensuite être lu à la fin en tant que perspective future.



# Chapitre 1

## Mécanismes d'absorption et relaxation thermique

Ce chapitre a pour but de survoler certaines interactions entre la matière et une impulsion laser à différents niveaux d'énergie. Les électrons soumis à un champ électromagnétique peuvent absorber les photons de diverses manières et nous chercherons à déterminer les mécanismes dominants selon l'intensité du champ imposé. D'abord, l'absorption linéaire et les effets thermiques entraînés sont discutés, d'abord avec une méthode analytique utilisant la fonction de Green, puis avec une méthode numérique, les différences finies. Deux mécanismes d'ionisation non linéaires sont ensuite abordés, l'ionisation par impact et l'ionisation multiphotonique. Les changements de propriétés optiques causés par la formation de plasma sont décrits par le modèle de Drude.

### 1.1 Absorption linéaire

L'absorption linéaire est probablement le cas d'interaction entre matière et rayonnement le plus simple. Pour un rayonnement d'énergie donnée traversant un milieu optique donné, chaque photon a une probabilité indépendante des autres photons d'être absorbé et voir son énergie transformée sous forme thermique. Ainsi, la quantité d'énergie transférée de la forme lumineuse à la forme thermique est simplement proportionnelle à l'énergie lumineuse présente. L'intensité lumineuse  $I$  sera la quantité utilisée et on peut alors décrire la diminution de cette intensité dans la direction de propagation  $z$  par l'équation différentielle

$$\frac{dI(z)}{dz} = -\alpha I(z), \quad (1.1)$$

où  $\alpha$  est le coefficient d'absorption linéaire en unité d'inverse de distance. La solution pour l'intensité est la loi de Beer-Lambert

$$I(z) = I_0 e^{-\alpha z}, \quad (1.2)$$

avec l'intensité initiale  $I_0$ . Ainsi, l'intensité lumineuse diminue d'un facteur  $e$  quand elle traverse une distance  $z = \alpha^{-1}$ .

Cette énergie sera ensuite transformée sous forme thermique. Le comportement de cette énergie peut être décrit par l'équation de la chaleur [24]

$$\frac{1}{D} \frac{\partial T(\vec{r},t)}{\partial t} - \nabla^2 T(\vec{r},t) = \frac{g(\vec{r},t)}{k}, \quad (1.3)$$

où  $T(\vec{r},t)$  est la température,  $\vec{r}$  est la position spatiale,  $t$  est le temps,  $\nabla^2$  est l'opérateur Laplacien,  $g(\vec{r},t)$  est la source d'énergie thermique,  $D$  est le coefficient de diffusivité thermique et  $k$  est le coefficient de conductivité thermique. La loi de Beer-Lambert sera utile afin de définir la source thermique  $g(\vec{r},t)$  en égalant la perte d'énergie lumineuse au gain d'énergie thermique.

L'équation de la chaleur est une équation différentielle partielle parabolique solutionnable par diverses méthodes. Les deux méthodes privilégiées dans ce chapitre se démarquent par leur puissance, ou leur capacité à fournir des solutions pour les cas les plus complexes. La première est une méthode analytique qui utilise la fonction de Green et la seconde est une méthode numérique, les différences finies.

### 1.1.1 Méthode analytique et fonction de Green

La fonction de Green est une solution de l'équation différentielle étudiée, dans le cas présent, l'équation de la chaleur. Plus particulièrement, c'est la solution pour une source thermique et des conditions aux limites spécifiques. La source thermique que l'on appliquera est une source unitaire ponctuelle et instantanée,

$$g(\vec{r},t) = \delta(\vec{r} - \vec{r}')\delta(t - t'), \quad (1.4)$$

avec  $\delta$ , la distribution de Dirac. On décrit souvent la fonction de Green comme la réponse impulsionale du système. Les conditions aux limites sont imposées comme homogènes lorsque l'on cherche à déterminer la fonction de Green. Le problème à résoudre est alors

$$\frac{1}{D} \frac{\partial G(\vec{r},t|\vec{r}',t')}{\partial t} - \nabla^2 G(\vec{r},t|\vec{r}',t') = \frac{\delta(\vec{r} - \vec{r}')\delta(t - t')}{k}. \quad (1.5)$$

La fonction  $G(\vec{r},t|\vec{r}',t')$  fournit la réponse du système au point  $\vec{r}$  et au temps  $t$  si une source thermique unitaire a été appliquée au point  $\vec{r}'$  et au temps  $t'$ . La solution de l'équation de la chaleur désirée, c'est-à-dire  $T(\vec{r},t)$  avec une source thermique, une condition initiale et des

conditions aux frontières quelconques, peut alors être trouvée avec [24, p.302]

$$\begin{aligned} T(\vec{r}, t) &= \int_{V'} G(\vec{r}, t | \vec{r}', t')|_{t'=0} F(\vec{r}') dV' \\ &+ \frac{D}{k} \int_{t'=0}^t \int_{V'} G(\vec{r}, t | \vec{r}', t') g(\vec{r}', t') dV' dt' \\ &+ D \sum_{i=1}^N \left[ \int_{t'=0}^t \int_{S'_i} G(\vec{r}, t | \vec{r}', t')|_{S_i} \frac{1}{k} f_i(\vec{r}', t') dS'_i dt' \right]. \end{aligned} \quad (1.6)$$

La solution est la somme de trois termes, trois contributions. Le premier terme est la contribution de la condition initiale  $F(\vec{r})$  sur tout le volume  $V$  du système à  $t = 0$ . Le second terme est la contribution de la source thermique  $g(\vec{r}, t)$  et le dernier terme est la contribution des  $N$  conditions aux frontières  $f_i(\vec{r}, t)$  définies sur les surfaces  $S_i$ . La démonstration de cette solution est explicitée à l'annexe A.

On veut maintenant appliquer cette méthode à un problème concret, soit la diffusion de l'énergie thermique engendrée par l'absorption linéaire d'une impulsion laser gaussienne.

### 1.1.2 Application à une impulsion laser gaussienne

La distribution spatiale d'une impulsion laser peut prendre diverses formes, mais la plus commune est très certainement la distribution gaussienne. La distribution temporelle est souvent gaussienne également, mais sa durée est généralement beaucoup plus courte que le temps caractéristique de la diffusion thermique, plus près de la milliseconde. On choisit alors une distribution de Dirac afin de décrire la dépendance temporelle de l'impulsion laser.

**Géométrie.** Concernant la géométrie du problème, on choisit une incidence normale sur un bloc de dimensions transverses infinies et d'épaisseur finie  $d_z$ . La condition initiale est une distribution uniforme de température  $T_0$  et les conditions frontières sont des conditions d'isolation thermique, soit

$$\frac{\partial T}{\partial n_i} \Big|_{S_i} = 0, \quad (1.7)$$

avec les directions normales  $n_i$  aux frontières  $S_i$ . En plaçant l'origine d'un système de coordonnées cylindriques  $\vec{r} = (\rho, \phi, z)$  au centre de la distribution spatiale de l'impulsion laser, on peut exploiter une symétrie de révolution et réduire le problème à deux dimensions. On reprend l'équation de la chaleur en coordonnées cylindriques

$$\frac{1}{D} \frac{\partial T(\rho, \phi, z, t)}{\partial t} - \left( \frac{\partial^2}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} + \frac{1}{\rho^2} \frac{\partial^2}{\partial \phi^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) T(\rho, \phi, z, t) = \frac{g(\rho, \phi, z, t)}{k}, \quad (1.8)$$

et on impose  $g(\rho, \phi, z, t) \rightarrow g(\rho, z, t)$ . Ainsi,  $T(\rho, \phi, z, t) \rightarrow T(\rho, z, t)$  et  $\partial T / \partial \phi = 0$  permettent de réduire le problème d'une dimension

$$\frac{1}{D} \frac{\partial T(\rho, z, t)}{\partial t} - \left( \frac{\partial^2}{\partial \rho^2} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial \rho} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) T(\rho, z, t) = \frac{g(\rho, z, t)}{k}. \quad (1.9)$$

**Fonction de Green associée.** Pour un cylindre de rayon infini et ayant une symétrie de révolution, la fonction de Green est donnée par [24, p.348]

$$G(\rho, z, t | \rho', z', t') = \left\{ [2D(t - t')]^{-1} \rho' \exp\left(-\frac{\rho^2 + \rho'^2}{4D(t - t')}\right) I_0\left(\frac{\rho\rho'}{2D(t - t')}\right) \right\} \\ \times \left[ \sum_{p=0}^{\infty} e^{-D\eta_p^2(t-t')} \frac{1}{N(\eta_p)} \xi(\eta_p, z) \xi(\eta_p, z') \right], \quad (1.10)$$

où  $I_0$  est la fonction de Bessel modifiée de premier type et d'ordre 0. La fonction de Green dépend de  $t - t'$ , car elle est nulle avant  $t'$  et ne dépend pas du moment absolu de l'impulsion, mais seulement du temps écoulé après celle-ci. On détermine  $\eta_p$ ,  $N(\eta_p)$  et  $\xi(\eta_p, z)$  en résolvant l'équation de la chaleur en 1-D (en  $z$  dans ce cas-ci), avec les conditions aux frontières appliquées en  $z$ , donc d'isolation. Il s'agit d'un problème de Sturm-Liouville

$$\frac{d^2\xi(z)}{dz^2} + \eta^2\xi(z) = 0 \quad ; \quad 0 < z < d_z \quad (1.11)$$

ayant pour solution

$$\eta_p = \frac{p\pi}{d_z} \quad ; \quad p = 0, 1, 2, \dots \quad (1.12)$$

$$\frac{1}{N(\eta_p)} = \frac{2}{d_z} \text{ pour } p > 0 \text{ et } \frac{1}{d_z} \text{ pour } p = 0 \quad ; \quad \xi(\eta_p, z) = \cos(\eta_p z). \quad (1.13)$$

Il est à noter que dans ce cas particulier (de conditions aux frontières d'isolation sur toutes les limites),  $\eta_0 = 0$  est une valeur propre à conserver, puisque  $\xi$  a une forme cosinusoïdale. Les autres types de conditions frontières entraînent tous un terme nul à  $\eta_0 = 0$ .

**Terme de source.** On définit ensuite la source thermique en égalant la perte d'énergie lumineuse au gain d'énergie thermique. On a déjà déterminé que les pertes d'énergie lumineuse étaient décrites, dans le cas d'absorption linéaire, par la loi de Beer-Lambert à l'équation (1.2) qui définit la dépendance de  $g$  en  $z$ , la direction de propagation. La fonction qui respecte toutes les conditions, soient dépendance gaussienne en  $\rho$ , distribution de Dirac en  $t$  et décroissance exponentielle en  $z$ , est

$$g(\rho, z, t) = g_0 e^{-\alpha z} e^{-a_0^2 \rho^2} \delta(t). \quad (1.14)$$

**Analyse dimensionnelle.** Avec l'introduction des paramètres  $g_0$ ,  $\alpha$  et  $a_0$ , il devient particulièrement avantageux de procéder à une analyse dimensionnelle afin d'éliminer au maximum le nombre de paramètres à varier avant de chercher une solution. Les paramètres actuels sont regroupés dans le tableau 1.1.

On introduit les variables sans dimension

$$\Theta = \frac{T}{T_c} \quad ; \quad P = \frac{\rho}{\rho_c} \quad ; \quad Z = \frac{z}{z_c} \quad ; \quad \tau = \frac{t}{t_c}. \quad (1.15)$$

Tableau 1.1: Paramètres du problème de diffusion thermique causée par l'absorption linéaire d'une impulsion laser gaussienne instantanée dans une plaquette d'épaisseur finie et de largeur infinie.

Paramètre	Symbol	Unités
Température initiale	$T_0$	K
Épaisseur de la cible	$d_z$	m
Amplitude de la source thermique	$g_0$	J/m <sup>3</sup>
Coefficient d'absorption linéaire	$\alpha$	m <sup>-1</sup>
Largeur du faisceau	$a_0$	m <sup>-1</sup>
Diffusivité thermique	$D$	m <sup>2</sup> /s
Conductivité thermique	$k$	J/(s·m·K)

Avec  $T_c, \rho_c, z_c, t_c$ , les grandeurs caractéristiques à définir. Une fois les variables sans dimension insérées dans l'équation (1.9), on a

$$\frac{T_c}{Dt_c} \frac{\partial \Theta(P,Z,\tau)}{\partial \tau} - \left( \frac{\partial^2}{\partial P^2} + \frac{1}{P} \frac{\partial}{\partial P} + \frac{\rho_c^2}{z_c^2} \frac{\partial^2}{\partial Z^2} \right) \frac{T_c \Theta(P,Z,\tau)}{\rho_c^2} = \frac{g_0 e^{-\alpha z_c Z} e^{-a_0^2 \rho_c^2 P^2} \delta(\tau)}{t_c k}, \quad (1.16)$$

où on a explicité la source  $g(P,Z,\tau)$ . À noter que dans le dernier terme,  $\delta(t) = \delta(t_c \tau) = \delta(\tau)/|t_c| = \delta(\tau)/t_c$ . On fait les choix suivants pour les grandeurs caractéristiques

$$\rho_c^2 = z_c^2 = \frac{1}{a_0^2} \quad ; \quad t_c = \frac{1}{a_0^2 D} \quad ; \quad T_c = \frac{g_0 D}{k}. \quad (1.17)$$

L'équation sans dimension est alors

$$\frac{\partial \Theta(P,Z,\tau)}{\partial \tau} - \left( \frac{1}{P} \frac{\partial}{\partial P} + \frac{\partial^2}{\partial P^2} + \frac{\partial^2}{\partial Z^2} \right) \Theta(P,Z,\tau) = e^{-\alpha Z/a_0 - P^2} \delta(\tau). \quad (1.18)$$

Il ne reste plus qu'un paramètre sans dimension, soit  $\alpha/a_0$ . La fonction de Green (1.10) devient alors

$$G(P,Z,\tau | P', Z', \tau') = \frac{a_0}{d_z} \left\{ \frac{P'}{2(\tau - \tau')} \exp \left( -\frac{P^2 + P'^2}{4(\tau - \tau')} \right) I_0 \left( \frac{PP'}{2(\tau - \tau')} \right) \right\} \\ \times \left[ 1 + 2 \sum_{p=1}^{\infty} e^{-\tilde{\eta}_p^2 (\tau - \tau')} \cos(\tilde{\eta}_p Z) \cos(\tilde{\eta}_p Z') \right], \quad (1.19)$$

avec  $\tilde{\eta}_p = p\pi/a_0 d_z$ .

**Calcul de la solution.** Tout est en place pour le calcul de la solution  $\Theta(P,Z,\tau)$ . On adapte d'abord l'équation (1.6) au cas cylindrique 2-D, sans dimension. On peut aussi éliminer le troisième terme, car on a choisi des conditions frontières homogènes. Ainsi,

$$\Theta(P,Z,\tau) = \frac{1}{a_0 d_z} \int_{A'} G(P,Z,\tau | P', Z', \tau') |_{\tau'=0} F(P', Z') dA' \\ + \frac{1}{a_0 d_z} \int_{\tau'=0}^{\tau} \int_{A'} G(P,Z,\tau | P', Z', \tau') g(P', Z', \tau') dA' d\tau', \quad (1.20)$$

où  $dA' = dP'dZ'$ . La borne supérieure d'intégration de  $Z'$  a été déterminée avec  $d_z/z_c = a_0 d_z$ .

Les solutions de certaines intégrales du calcul sont tirées de [25]. On commence par l'intégration du premier terme, que l'on note  $\Theta_1$ . Ce terme correspond à la contribution de la condition initiale,  $F(P,Z) = \Theta_0$ , une constante. Puisque ce terme ne tient pas compte de la source thermique, on s'attend à ce que le résultat soit également une constante, donc que le système initialement à l'équilibre le demeure. Ainsi le premier terme est

$$\begin{aligned} \Theta_1(P,Z,\tau) &= \frac{\Theta_0}{a_0 d_z} \int_{P'=0}^{\infty} \int_{Z'=0}^{a_0 d_z} \left\{ \frac{P'}{2\tau} \exp\left(-\frac{P^2 + P'^2}{4\tau}\right) I_0\left(\frac{PP'}{2\tau}\right) \right\} \\ &\quad \times \left[ 1 + 2 \sum_{p=1}^{\infty} e^{-\tilde{\eta}_p^2 \tau} \cos(\tilde{\eta}_p Z) \cos(\tilde{\eta}_p Z') \right] dP' dZ'. \end{aligned} \quad (1.21)$$

On réarrange les termes pour obtenir trois intégrales distinctes

$$\begin{aligned} \Theta_1(P,Z,\tau) &= \frac{\Theta_0 \exp\left(-\frac{P^2}{4\tau}\right)}{2a_0 d_z \tau} \int_{P'=0}^{\infty} P' \exp\left(-\frac{P'^2}{4\tau}\right) I_0\left(\frac{PP'}{2\tau}\right) dP' \\ &\quad \times \left[ \int_{Z'=0}^{a_0 d_z} dZ' + 2 \sum_{p=1}^{\infty} e^{-\tilde{\eta}_p^2 \tau} \cos(\tilde{\eta}_p Z) \int_{Z'=0}^{c_1 d_z} \cos(\tilde{\eta}_p Z') dZ' \right]. \end{aligned} \quad (1.22)$$

On peut trouver le résultat de la première intégrale dans [25], la deuxième est triviale et la dernière vaut 0. Le résultat est alors

$$\begin{aligned} \Theta_1(P,Z,\tau) &= \frac{\Theta_0 \exp\left(-\frac{P^2}{4\tau}\right)}{2a_0 d_z \tau} \times \left[ 2\tau \exp\left(\frac{P^2}{4\tau}\right) \right] \times (a_0 d_z + 0) \\ &= \Theta_0. \end{aligned} \quad (1.23)$$

C'est le résultat attendu, puisque la source thermique n'influence pas ce terme. Il est à noter que l'on aurait pu éliminer ce terme dès le départ en effectuant un décalage de la température, soit  $\Theta' = \Theta - \Theta_0$ . Ainsi,  $\Theta'_0 = 0$  et le premier terme devient nul. Ce calcul permet toutefois de démontrer la puissance de la méthode et de s'assurer qu'il n'y a pas d'incohérence.

On résout ensuite le second terme de (1.20) noté  $\Theta_2$ , que l'on sépare à son tour en deux termes. Un premier, le cas  $p = 0$ , noté  $\Theta_{2,0}$  et un deuxième, le cas  $p > 0$ , noté  $\Theta_{2,p}$ . Donc, le premier cas est

$$\begin{aligned} \Theta_{2,0}(P,Z,\tau) &= \frac{1}{a_0 d_z} \int_{\tau'=0}^{\tau} \int_{P'=0}^{\infty} \int_{Z'=0}^{a_0 d_z} \left\{ \frac{P'}{2(\tau - \tau')} \exp\left(-\frac{P^2 + P'^2}{4(\tau - \tau')}\right) I_0\left(\frac{PP'}{2(\tau - \tau')}\right) \right\} \\ &\quad \times e^{-\alpha Z'/a_0} e^{-P'^2} \delta(\tau') dP' dZ' d\tau'. \end{aligned} \quad (1.24)$$

Une fois les termes réarrangés, on a

$$\begin{aligned}\Theta_{2,0}(P, Z, \tau) = & \frac{1}{2a_0 d_z} \int_{\tau'=0}^{\tau} \frac{\delta(\tau') \exp\left(\frac{-P^2}{4(\tau-\tau')}\right)}{(\tau-\tau')} \\ & \times \int_{P'=0}^{\infty} P' \exp\left(-\frac{P'^2(1+4(\tau-\tau'))}{4(\tau-\tau')}\right) I_0\left(\frac{PP'}{2(\tau-\tau')}\right) dP' \\ & \times \int_{Z'=0}^{a_0 d_z} e^{-\alpha Z'/a_0} dZ' d\tau'.\end{aligned}\quad (1.25)$$

Grâce à la fonction delta  $\delta(\tau')$ , il suffit d'évaluer la fonction à  $\tau' = 0$  afin d'effectuer l'intégrale en  $\tau'$ . La seconde intégrale se trouve également dans [25] et la dernière est triviale. On a maintenant

$$\begin{aligned}\Theta_{2,0}(P, Z, \tau) &= \frac{1}{2a_0 d_z \tau} \exp\left(\frac{-P^2}{4\tau}\right) \times \left[ \frac{2\tau}{(1+4\tau)} \exp\left(\frac{P^2}{4\tau(1+4\tau)}\right) \right] \times \frac{a_0}{\alpha} \left(1 - e^{-\alpha d_z}\right) \\ &= \frac{1}{\alpha d_z} \frac{(1 - e^{-\alpha d_z})}{(1+4\tau)} \exp\left(\frac{-P^2}{4\tau}\right) \exp\left(\frac{P^2}{4\tau(1+4\tau)}\right).\end{aligned}\quad (1.26)$$

Puis, le cas  $p > 0$  est

$$\Theta_{2,p}(P, Z, \tau) = \int_{\tau'=0}^{\tau} \int_{P'=0}^{\infty} \int_{Z'=0}^{a_0 d_z} \left\{ \frac{P'}{2(\tau-\tau')} \exp\left(-\frac{P^2 + P'^2}{4(\tau-\tau')}\right) I_0\left(\frac{PP'}{2(\tau-\tau')}\right) \right\} \quad (1.27)$$

$$\times \frac{2}{a_0 d_z} \left[ \sum_{p=1}^{\infty} e^{-\tilde{\eta}_p^2(\tau-\tau')} \cos(\tilde{\eta}_p Z) \cos(\tilde{\eta}_p Z') \right] \times \left[ e^{-\alpha Z'/a_0 - P'^2} \delta(\tau') \right] dP' dZ' d\tau', \quad (1.28)$$

qui, une fois les termes réarrangés et l'intégrale en  $\tau'$  effectuée, devient

$$\begin{aligned}\Theta_{2,p}(P, Z, \tau) &= \frac{1}{a_0 d_z \tau} \exp\left(\frac{-P^2}{4\tau}\right) \int_{P'=0}^{\infty} P' \exp\left(-\frac{P'^2(1+4\tau)}{4\tau}\right) I_0\left(\frac{PP'}{2\tau}\right) dP' \\ &\times \sum_{p=1}^{\infty} e^{-\tilde{\eta}_p^2 \tau} \cos(\tilde{\eta}_p Z) \int_{Z'=0}^{a_0 d_z} \cos(\tilde{\eta}_p Z') e^{-\alpha Z'/a_0} dZ'.\end{aligned}\quad (1.29)$$

L'intégrale en  $P'$  est la même que pour  $\Theta_{2,0}$  et l'intégrale en  $Z'$  se trouve dans [25]. On obtient alors

$$\begin{aligned}\Theta_{2,p}(P, Z, \tau) &= \frac{1}{\alpha d_z} \exp\left(\frac{-P^2}{4\tau}\right) \left[ \frac{2}{1+4\tau} \exp\left(\frac{P^2}{4\tau(1+4\tau)}\right) \right] \\ &\times \sum_{p=1}^{\infty} e^{-\tilde{\eta}_p^2 \tau} \cos(\tilde{\eta}_p Z) \times \left( \frac{-e^{-\alpha d_z} (-1)^p + 1}{1 + \left(\frac{p\pi}{\alpha d_z}\right)^2} \right).\end{aligned}\quad (1.30)$$

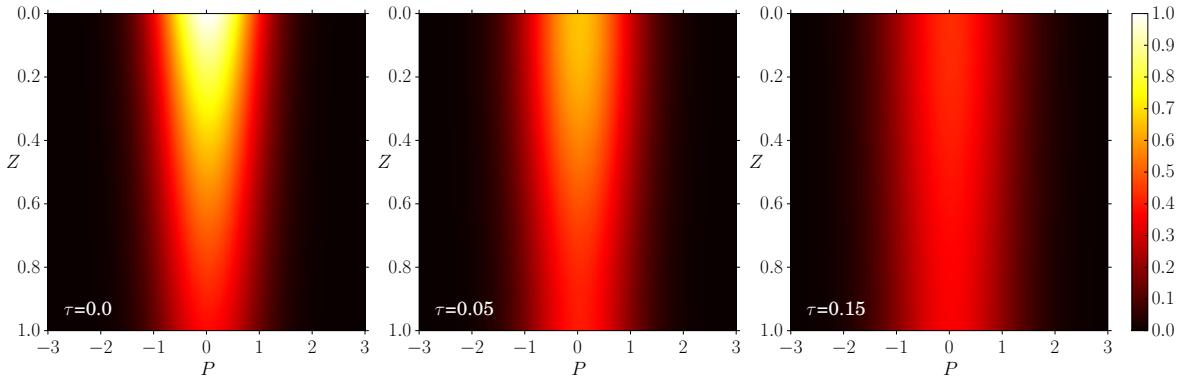


FIGURE 1.1: Solution analytique de  $\Theta(P,Z,\tau)$  pour les paramètres  $\alpha = 1, d_z = 1, a_0 = 1$  et les  $10^4$  premiers termes de la somme infinie.

Finalement, on réunit tous les termes  $\Theta = \Theta_1 + \Theta_{2,0} + \Theta_{2,p}$ . La solution complète est ainsi

$$\begin{aligned} \Theta(P,Z,\tau) &= \Theta_0 + \frac{1}{\alpha d_z(1+4\tau)} \exp\left(\frac{P^2}{4\tau}\left(\frac{1}{(1+4\tau)} - 1\right)\right) \\ &\quad \times \left[ \left(1 - e^{-\alpha d_z}\right) + 2 \sum_{p=1}^{\infty} e^{-\tilde{\eta}_p^2 \tau} \cos(\tilde{\eta}_p Z) \times \left( \frac{-e^{-\alpha d_z}(-1)^p + 1}{1 + \left(\frac{p\pi}{\alpha d_z}\right)^2} \right) \right], \end{aligned} \quad (1.31)$$

avec  $\tilde{\eta}_p = p\pi/a_0 d_z$ . La solution est présentée à la figure 1.1 avec les paramètres  $\alpha = 1, d_z = 1, a_0 = 1$  et les  $10^4$  premiers termes de la somme infinie (les 4 premières décimales sont convergées).

La méthode de la fonction de Green est très puissante et a l'avantage d'être analytique, donc exacte. Elle peut s'appliquer à des problèmes comportant des sources thermiques plus complexes, mais les intégrales peuvent devenir rapidement très complexes et une solution analytique impossible à obtenir. Dans ce cas, on peut se tourner vers des méthodes semi-analytiques qui incorporent à cette méthode des intégrateurs numériques. Dans la prochaine section, une méthode purement numérique est présentée.

### 1.1.3 Comparaison avec la méthode des différences finies

Les méthodes numériques ont un avantage certain par rapport aux méthodes analytiques quant à leur versatilité et, bien souvent, leur simplicité. La méthode présentée dans cette section est basée sur un concept très simple, mais d'une efficacité redoutable, les différences finies qui reviendront plusieurs fois dans les prochains chapitres. Puisqu'un ordinateur ne peut gérer de quantités infinies ou infinitésimales, on remplace les dérivées des équations différentielles par des différences finies, telle que

$$\frac{df(x)}{dx} \rightarrow \frac{f(x+h) - f(x)}{h} \quad (\text{vers l'avant}). \quad (1.32)$$

On dit que ce cas particulier de différence finie est *vers l'avant*, car on prend la pente entre le point où l'on veut approximer la dérivée et le point suivant. Il existe aussi un cas dit *vers l'arrière*,

$$\frac{df(x)}{dx} \rightarrow \frac{f(x) - f(x-h)}{h} \quad (\text{vers l'arrière}), \quad (1.33)$$

puis un cas centré,

$$\frac{df(x)}{dx} \rightarrow \frac{f(x+h) - f(x-h)}{2h} \quad (\text{centre}). \quad (1.34)$$

Pour une valeur finie de  $h$ , mais très petite, on obtient une approximation acceptable pour la dérivée de  $f(x)$ . Si l'on souhaite solutionner une équation différentielle de premier ordre en une dimension, par exemple l'équation (1.1) qui décrit l'absorption linéaire, on écrit

$$\begin{aligned} \frac{I(z+h) - I(z)}{h} &= -\alpha I(z), \\ I(z+h) &= (1 - h\alpha)I(z). \end{aligned} \quad (1.35)$$

Ainsi, on peut connaître la valeur de  $I(z+h)$  à partir de  $I(z)$ . En pratique, il faut spécifier une condition frontière, disons  $I(0) = I_0$ , afin de commencer les itérations. Le premier pas est ainsi  $I(0+h) = (1 - h\alpha)I_0$ , puis le deuxième pas peut être déterminé à partir du résultat précédent et ainsi de suite.

Dans le cas d'une équation différentielle du deuxième ordre, une dérivée seconde devient

$$\frac{d^2 f(x)}{dx^2} \rightarrow \frac{f(x+h) - 2f(x) + f(x-h)}{h^2}. \quad (1.36)$$

Ce qui signifie que pour connaître  $f(x+h)$ , il faut d'abord connaître les deux points précédents  $f(x)$  et  $f(x-h)$ . Pour faire une analogie avec les méthodes analytiques, cela correspond à spécifier la première dérivée comme condition initiale. Ce concept s'extrapole aux ordres supérieurs. À l'ordre trois, il faut également spécifier la dérivée seconde initiale, car trois points sont requis pour démarrer les itérations.

On souhaite maintenant appliquer cette méthode à l'équation (1.18), soit l'équation de diffusion adimensionnalisée pour l'énergie thermique absorbée linéairement par une impulsion laser gaussienne instantanée. L'équation étant considérablement plus complexe que l'exemple précédent, il faut introduire une notation plus pratique et compacte. Les quantités  $P, Z, \tau$  seront discrétisées avec des pas de  $\Delta P, \Delta Z$  et  $\Delta \tau$ . La température  $\Theta(P, Z, \tau)$  devient alors  $\Theta(i\Delta P, j\Delta Z, n\Delta \tau)$  où  $i, j, n$  sont le nombre de pas entre la coordonnée et l'origine. On notera désormais la température  $\Theta_{i,j}^n$ . L'équation (1.18) devient alors

$$\begin{aligned} \frac{\Theta_{i,j}^{n+1} - \Theta_{i,j}^n}{\Delta \tau} - \frac{1}{P} \frac{\Theta_{i+1,j}^n - \Theta_{i-1,j}^n}{2\Delta P} - \frac{\Theta_{i+1,j}^n - 2\Theta_{i,j}^n + \Theta_{i-1,j}^n}{\Delta P^2} \\ - \frac{\Theta_{i,j+1}^n - 2\Theta_{i,j}^n + \Theta_{i,j-1}^n}{\Delta Z^2} = e^{-\alpha Z/a_0 - P^2} \delta(\tau). \end{aligned} \quad (1.37)$$

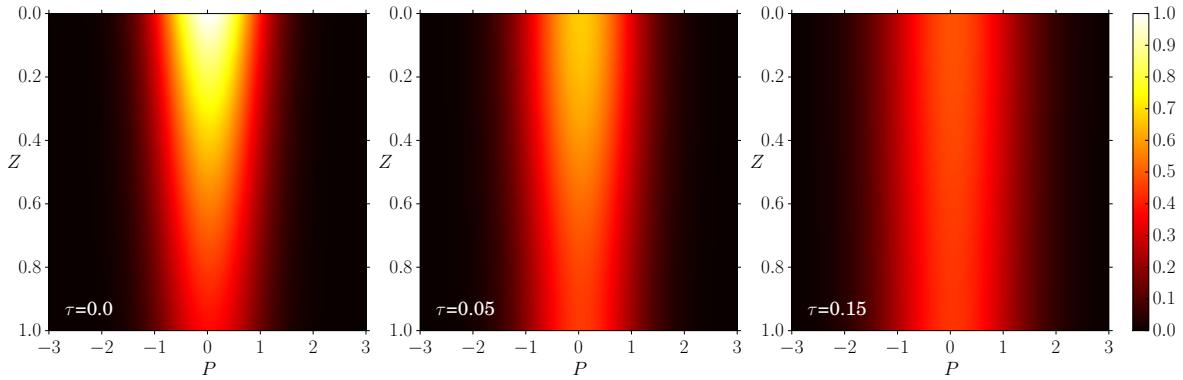


FIGURE 1.2: Solution numérique de  $\Theta(P, Z, \tau)$  pour les paramètres  $\alpha = 1, d_z = 1, a_0 = 1$  avec la méthode des différences finies. La discrétisation est  $\Delta P = 0.05, \Delta Z = 0.005, \Delta \tau = 7.5 \cdot 10^{-6}$  dans un domaine de  $-10 \leq P \leq 10$  et  $0 \leq Z \leq d_z$ .

La fonction de Dirac  $\delta(\tau)$  pourrait être remplacée par une gaussienne très étroite, mais une autre façon de faire est d'utiliser la solution analytique précédemment déterminée afin d'avoir une solution pour  $\tau = 0$ . Puis, à  $\tau > 0$ , le terme de source disparaît simplement. Ainsi, on a  $\Theta_{i,j}^0$ , et on peut trouver  $\Theta_{i,j}^{n+1}$  avec

$$\Theta_{i,j}^{n+1} = \Theta_{i,j}^n + \Delta \tau \left[ \frac{1}{P} \frac{\Theta_{i+1,j}^n - \Theta_{i-1,j}^n}{2\Delta P} + \frac{\Theta_{i+1,j}^n - 2\Theta_{i,j}^n + \Theta_{i-1,j}^n}{\Delta P^2} + \frac{\Theta_{i,j+1}^n - 2\Theta_{i,j}^n + \Theta_{i,j-1}^n}{\Delta Z^2} \right]. \quad (1.38)$$

Le facteur  $1/P$  est remplacé par  $1/i\Delta P$  et dans l'éventualité où  $i = 0$ , on élimine le terme divergent, car c'est le terme de la première dérivée de  $P$  qui doit être nulle à  $i = 0$ , grâce à la symétrie à  $P = 0$ .

Il faut également spécifier les dérivées aux frontières pour  $P$  et  $Z$ . Pour  $P$ , on ne peut pas choisir un domaine infini, comme on a fait pour trouver la solution analytique, alors on choisit un domaine suffisamment grand pour que les variations de la solution soient négligeables aux frontières de  $P$  et on y impose des conditions d'isolation. Une condition d'isolation signifie des dérivées premières nulles aux frontières, ce qu'on impose en ajoutant des points dits *fantômes* autour du domaine de simulation. Ces points se démarquent par leurs indices  $i,j < 0$  ou  $i,j > I,J$ . Les conditions d'isolation sont alors  $\Theta_{-1,j}^n = \Theta_{0,j}^n$  et  $\Theta_{I+1,j}^n = \Theta_{I,j}^n$ , avec  $I$ , la valeur maximale de  $i$  dans le domaine de simulation. On impose également des conditions d'isolation aux frontières de  $Z$ , soient  $\Theta_{i,-1}^n = \Theta_{i,0}^n$  et  $\Theta_{i,J+1}^n = \Theta_{i,J}^n$  où  $J$  est la valeur de  $j$  à  $Z = a_0 d_z$ . On obtient ainsi la solution présentée à la figure 1.2.

À l'oeil, les différences entre les solutions fournies par les deux méthodes, analytique et numérique, sont minimes. C'est pourquoi leur différence relative sur une échelle logarithmique est présentée à la figure 1.3. Ces figures permettent de constater que les deux solutions diffèrent principalement aux limites de  $P$ , suggérant que le domaine limité de la solution numérique a

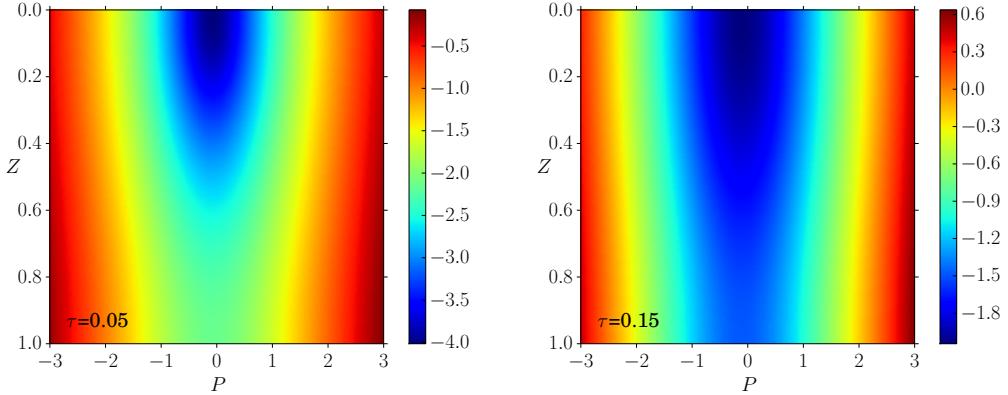


FIGURE 1.3: Comparaison entre les solutions de  $\Theta$  obtenues avec la méthode analytique de la fonction de Green ( $\Theta(P, Z, \tau)$ ) et la méthode numérique des différences finies ( $\Theta_{i,j}^n$ ). L'échelle de couleurs suit le logarithme de la différence relative  $|\Theta_{i,j}^n - \Theta(P, Z, \tau)|/\Theta(P, Z, \tau)$ .

eu un impact en comparaison à son domaine infini pour la solution analytique. Autour des maxima de  $\Theta$  la différence est de l'ordre de  $10^{-4} - 10^{-2}$ .

La méthode des différences finies a également l'avantage d'être facilement modifiée afin de tenir compte de beaucoup plus d'éléments. On pourrait changer la source thermique pour un train d'impulsions et étudier l'accumulation thermique par exemple. On peut également inclure des termes non linéaires, telle une dépendance entre la capacité thermique et la température. La prochaine section se penche sur les cas d'absorption non linéaire.

## 1.2 Absorption non linéaire et génération de plasma

Dans la section précédente, les propriétés optiques étaient constantes et la présence d'une impulsion laser n'avait aucune influence sur celles-ci. Chaque photon avait une probabilité constante d'être absorbé indépendamment de la présence d'autres photons. Dans le cas d'interactions faibles, cette approche est appropriée, mais quand l'intensité augmente, d'autres mécanismes d'interaction non linéaires entre lumière et matière peuvent commencer à être importants, voire dominants. C'est le cas des mécanismes d'ionisation par impact et d'ionisation multiphotonique.

L'ionisation d'un atome ou d'une molécule se produit lorsqu'un des électrons de valence absorbe l'énergie nécessaire  $E_i$  afin d'être séparé de son atome ou de sa molécule. On dit qu'il est passé de la bande de valence à la bande de conduction, car c'est la présence d'électrons dans la bande de conduction qui permet au matériau d'être ou de devenir conducteur.

### 1.2.1 Modèle de Drude

L'ionisation entraîne des changements dans les propriétés optiques du matériau, car les électrons promus à la bande de conduction interagissent différemment avec un champ électromagnétique incident par rapport aux électrons de la bande de valence. Il sera donc nécessaire de s'équiper d'un modèle pouvant prédire ces changements. Le modèle de Drude [26, chapitre 1] permet d'obtenir la variation de la permittivité complexe  $\tilde{\epsilon}$  d'un matériau en fonction de la fréquence de plasma, définie comme

$$\omega_p = \left( \frac{e^2 N_e}{\epsilon_0 m_{\text{opt}}^* m_e} \right)^{1/2}, \quad (1.39)$$

où la charge élémentaire est dénotée par  $e$ , la densité d'électrons dans la bande de conduction par  $N_e$ , la permittivité du vide par  $\epsilon_0$  et la masse optique effective des électrons par  $m_{\text{opt}}^* m_e$ . Le modèle de Drude prédit que la permittivité d'un matériau ionisé sera

$$\tilde{\epsilon} = \epsilon + \tilde{\epsilon}_{\text{Drude}} = \epsilon + (1 - i\gamma/\omega) \left[ -\frac{\omega_p^2/\omega^2}{1 + \gamma^2/\omega^2} \right], \quad (1.40)$$

où  $\epsilon$  est la permittivité du matériau sans l'excitation laser,  $\omega$  est la fréquence des photons incidents et  $\gamma$  est défini comme l'inverse du temps d'amortissement de Drude  $\tau_D$ .

Puisque  $\text{Re}(\tilde{\epsilon}_{\text{Drude}}) < 0$ , l'augmentation de la densité d'électrons dans la bande de conduction aura toujours pour effet de diminuer la partie réelle de la permittivité. Si elle est positive sans excitation extérieure, il y aura toujours un seuil critique où  $\text{Re}(\tilde{\epsilon})$  changera de signe, correspondant exactement au point où les parties réelles et imaginaires de l'indice de réfraction  $\tilde{n} = \tilde{\epsilon}^{1/2}$  sont égales. Ces deux parties, réelle et imaginaire, s'obtiennent à partir de la permittivité avec

$$\text{Re}(\tilde{n}) = \left[ \frac{|\tilde{\epsilon}| + \text{Re}(\tilde{\epsilon})}{2} \right]^{1/2}, \quad (1.41)$$

$$\text{Im}(\tilde{n}) = \left[ \frac{|\tilde{\epsilon}| - \text{Re}(\tilde{\epsilon})}{2} \right]^{1/2}, \quad (1.42)$$

où  $|\tilde{\epsilon}| = \sqrt{[\text{Re}(\tilde{\epsilon})]^2 + [\text{Im}(\tilde{\epsilon})]^2}$ . À l'inverse, les parties réelle et imaginaire de la permittivité s'obtiennent de l'indice de réfraction avec

$$\text{Re}(\tilde{\epsilon}) = [\text{Re}(\tilde{n})]^2 - [\text{Im}(\tilde{n})]^2, \quad (1.43)$$

$$\text{Im}(\tilde{\epsilon}) = 2\text{Re}(\tilde{n})\text{Im}(\tilde{n}). \quad (1.44)$$

Certaines formules pratiques supplémentaires peuvent être trouvées. D'abord, on peut écrire l'équation (1.39) sous une forme qui permettra de passer de la fréquence de plasma à la densité d'électrons de la bande de conduction,

$$N_e[10^{21} \text{cm}^{-3}] = m_{\text{opt}}^* \left( \frac{\omega_p}{\omega} \right)^2 \frac{1.11 \cdot 10^6}{(\lambda[\text{nm}])^2}. \quad (1.45)$$

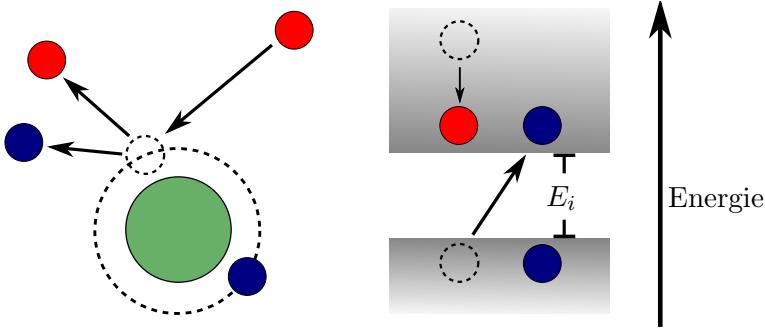


FIGURE 1.4: Schéma d'une ionisation par impact. Un électron initialement dans la bande de conduction et ayant une grande énergie (rouge) frappe un électron de la bande de valence (bleu) qui absorbe une partie de l'énergie lors de la collision inélastique et est séparé de l'ion (vert).

On peut également déterminer à quelle valeur de  $\omega_p/\omega$  la permittivité changera de signe, un point critique qui engendre des changements qualitatifs importants dans le comportement du matériau,

$$\left(\frac{\omega_p}{\omega}\right)_c = \epsilon^{1/2} \left(1 + \frac{\gamma^2}{\omega^2}\right)^{1/2}. \quad (1.46)$$

### 1.2.2 Compétition entre ionisation par impact et multiphotonique

Lorsqu'un matériau est soumis à un champ laser intense, deux mécanismes d'ionisation importants sont l'ionisation par impact et l'ionisation multiphotonique [27, 28]. Le premier cas, l'ionisation par impact, se produit lorsqu'un électron initialement dans la bande de conduction absorbe une grande quantité d'énergie et frappe un électron de la bande de valence qui est, à son tour, promu à la bande de conduction, tel que représenté à la figure 1.4.

L'ionisation multiphotonique, quant à elle, nécessite un champ très intense selon le nombre de photons impliqués lors de l'absorption, car ces derniers doivent être présents simultanément en un endroit précis de l'espace pour être absorbés par l'électron, ce qui est peu probable lorsque les photons sont peu nombreux. Ce phénomène est représenté à la figure 1.5.

Ainsi, un électron de la bande de valence a une probabilité par unité de temps  $p_{\text{imp}}$  d'être promu à la bande de conduction lorsqu'il est soumis à un champ électromagnétique par mécanisme d'ionisation par impact. Il a également une probabilité par unité de temps  $p_{\text{mph}}$  de passer dans la bande de conduction par absorption multiphotonique. Ces probabilités  $p_{\text{imp}}$  et  $p_{\text{mph}}$  peuvent être décrites approximativement par [28]

$$p_{\text{imp}} \approx \frac{E_p}{E_i} \left( \frac{2\omega^2 \gamma_{\text{eff}}}{\omega^2 + \gamma_{\text{eff}}^2} \right), \quad (1.47)$$

$$p_{\text{mph}} \approx \omega n_{\text{ph}}^{3/2} \left( \frac{E_p}{2E_i} \right)^{n_{\text{ph}}}, \quad (1.48)$$

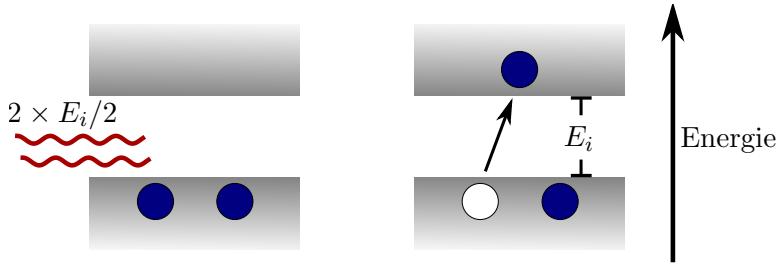


FIGURE 1.5: Schéma d'une ionisation à deux photons. Un électron de la bande de valence a besoin d'absorber une énergie  $E_i$  afin d'être promu à la bande de conduction. Il absorbe deux photons d'énergie  $E_i/2$  simultanément.

avec l'énergie pondéromotrice de l'électron  $E_p$ , l'énergie d'ionisation  $E_i$ , la fréquence de collision  $\gamma_{\text{eff}}$ <sup>1</sup> et le nombre de photons impliqués lors de l'ionisation multiphotonique  $n_{\text{ph}}$ . L'énergie pondéromotrice peut être exprimée sous la forme

$$E_p = \frac{e^2}{2\omega^2 cm_e \epsilon_0} I, \quad (1.49)$$

avec l'intensité du champ électromagnétique  $I$ . Ainsi, après quelques manipulations simples, on trouve

$$\frac{p_{\text{imp}}}{p_{\text{mph}}} = \frac{2^{2n_{\text{ph}}}\omega\gamma_{\text{eff}}}{n_{\text{ph}}^{3/2}(\omega^2 + \gamma_{\text{eff}}^2)} \left( \frac{E_i \omega^2 cm_e \epsilon_0}{e^2 I} \right)^{n_{\text{ph}}-1}. \quad (1.50)$$

Ce rapport permet de connaître lequel des deux mécanismes d'ionisation domine selon l'intensité du champ électromagnétique appliqué. On peut également connaître l'intensité de transition  $I_t$  pour laquelle  $p_{\text{imp}} = p_{\text{mph}}$ , qui est

$$I_t = \frac{E_i \omega^2 cm_e \epsilon_0}{e^2} \left( \frac{2^{2n_{\text{ph}}}\omega\gamma_{\text{eff}}}{n_{\text{ph}}^{3/2}(\omega^2 + \gamma_{\text{eff}}^2)} \right)^{1/(n_{\text{ph}}-1)}. \quad (1.51)$$

Deux exemples sont présentés à la figure 1.6 avec des valeurs numériques réalistes. Les deux exemples utilisent  $\omega = 2.35 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$  (800 nm),  $\gamma_{\text{eff}} = 10^{16} \text{ s}^{-1}$ . Dans l'un des cas, l'énergie d'ionisation est  $E_i = 3.1 \text{ eV}$ , ce qui signifie que deux photons sont nécessaires à l'ionisation multiphotonique, car les photons ont chacun une énergie de 1.55 eV à cette fréquence. Dans l'autre cas, l'énergie d'ionisation est  $E_i = 6.2 \text{ eV}$ , il faut donc quatre photons pour l'ionisation multiphotonique.

On commence par l'approche simple de Gamaly *et. al* [28]. Considérant uniquement ces deux mécanismes d'ionisation, la variation de densité d'électrons dans la bande de conduction  $N_e$

1. Tel que noté par Gamaly *et. al* [28], la fréquence de collision  $\gamma_{\text{eff}}$  de l'équation (1.47) n'est généralement pas la même fréquence de collision que  $\gamma$  à l'équation (1.40). Dans le premier cas,  $\gamma_{\text{eff}}$  est associé à des collisions inélastiques entraînant un transfert d'énergie entre électrons. Dans le second cas,  $\gamma$  est associé aux collisions élastiques des électrons "boules de billard" du modèle de Drude. On interprète alors ces deux paramètres distinctement.

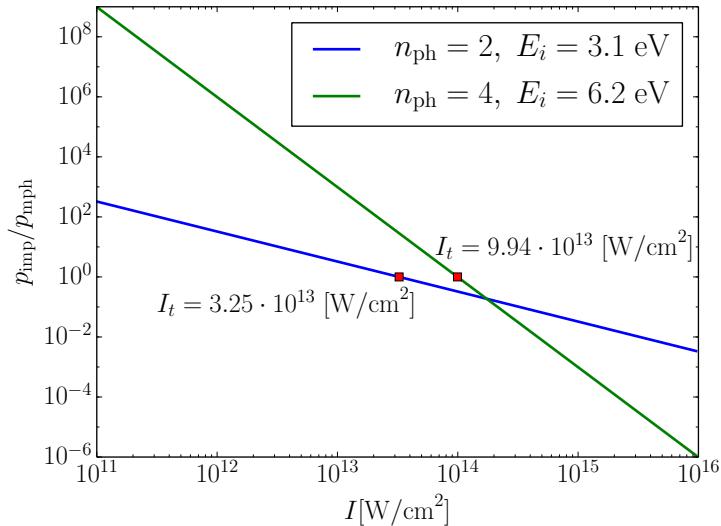


FIGURE 1.6: Rapport entre les probabilités d’ionisation  $p_{\text{imp}}$  et  $p_{\text{mph}}$  en fonction de l’intensité du champ électromagnétique appliquée. Les paramètres choisis sont  $\omega = 2.35 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$  ( $\lambda = 800 \text{ nm}$ ),  $\gamma_{\text{eff}} = 10^{16} \text{ s}^{-1}$  et les valeurs indiquées de  $n_{\text{ph}}$  et  $E_i$ .

est

$$\frac{dN_e}{dt} = p_{\text{imp}} N_e + p_{\text{mph}} N_a, \quad (1.52)$$

avec la densité d’atomes ou de molécules neutres  $N_a$ . La solution générale pour  $N_e(t)$  est

$$N_e(t) = \left[ N_e(0) + N_a \frac{p_{\text{mph}}}{p_{\text{imp}}} (1 - e^{-p_{\text{imp}}t}) \right] e^{p_{\text{imp}}t}. \quad (1.53)$$

Les résultats, présentés à la figure 1.7, semblent aller dans le sens des discussions de Gamaly *et al.* Pour une intensité de  $I = 10^8 \text{ W/cm}^2$ , l’ionisation par impact domine et le système s’emballe sur une échelle temporelle nanoseconde. Pour une intensité de  $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , l’ionisation multiphotonique domine et le système s’emballe sur une échelle temporelle femto-seconde.

Ce calcul est toutefois très incomplet sans une forme de saturation. Si l’on considère uniquement la première ionisation, la valeur maximale de  $N_e$  devrait être  $N_a$ . Cet élément est ajouté dans la prochaine section, en plus de l’absorption linéaire, d’une enveloppe temporelle gaussienne au champ et du modèle de Drude afin de tenir compte de la formation du plasma dans les propriétés optiques du matériau.

## 1.3 Interaction entre une impulsion laser et le plasma généré

### 1.3.1 Construction du modèle

Pour obtenir une meilleure description de l’ionisation dans un matériau, on permet d’abord une saturation de la densité d’électrons  $N_e$  en modifiant la quantité disponible  $N_a \rightarrow (N_a - N_e)$ .

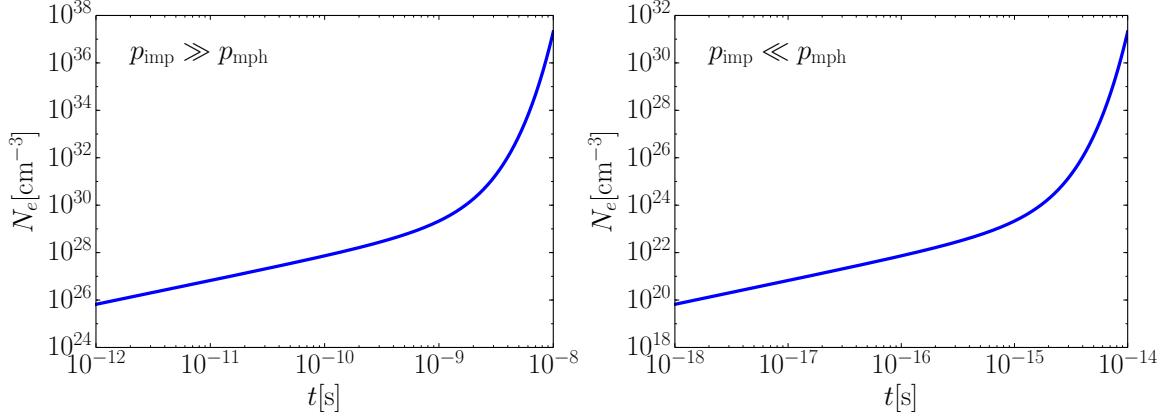


FIGURE 1.7: Modèle simple d’ionisation selon deux régimes distincts. D’abord, pour une intensité de  $I = 10^8 \text{ W/cm}^2$  (gauche) où l’ionisation par impact domine, puis, pour une intensité de  $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$  (droite) où l’ionisation multiphotonique domine. Les autres paramètres sont  $\omega = 2.35 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$  ( $\lambda = 800 \text{ nm}$ ),  $\gamma_{\text{eff}} = 10^{16} \text{ s}^{-1}$ ,  $n_{\text{ph}} = 2$ ,  $E_i = 3.1 \text{ eV}$ ,  $N_e(0) = 0$  et  $N_a = 10^{29} \text{ m}^{-3}$ .

On inclut également l’absorption linéaire afin d’obtenir la nouvelle équation d’évolution

$$\frac{\partial}{\partial t} N_e(z,t) = \left[ \frac{\alpha I(z,t)}{\hbar\omega} + p_{\text{imp}}(z,t)N_e(z,t) + p_{\text{mph}}(z,t)[N_a - N_e(z,t)] \right]. \quad (1.54)$$

Le coefficient  $\alpha$  est le même qu’à la section précédente et représente l’absorption linéaire. Les probabilités  $p_{\text{imp}}$  et  $p_{\text{mph}}$  ne sont plus considérées constantes, puisque l’on souhaite également varier l’intensité du champ électromagnétique dans le temps et l’espace. La dépendance en profondeur  $z$  est alors incluse afin de considérer la réduction de l’intensité lors de la propagation dans le matériau,

$$\frac{\partial}{\partial z} I(z,t) = - \left[ \alpha + \alpha_{\text{bc}}(z,t) + \frac{(n_{\text{ph}}\hbar\omega)p_{\text{mph}}(z,t)}{I(z,t)[N_a - N_e(z,t)]} \right] I(z,t), \quad (1.55)$$

où  $\alpha_{\text{bc}}(z,t)$  représente l’absorption des électrons de la bande de conduction. Le facteur  $(n_{\text{ph}}\hbar\omega)$  représente l’énergie des  $n_{\text{ph}}$  photons absorbés lors d’une ionisation multiphotonique. En explicitant tous les termes, on trouve le système d’équations différentielles partielles

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} N_e(z,t) &= \left[ \frac{\alpha}{\hbar\omega} + \frac{e^2\gamma_{\text{eff}}}{E_i(\omega^2 + \gamma_{\text{eff}}^2)c m_e \epsilon_0} N_e(z,t) \right. \\ &\quad \left. + \omega n_{\text{ph}}^{3/2} \left( \frac{e^2}{4E_i\omega^2 c m_e \epsilon_0} \right)^{n_{\text{ph}}} [I(z,t)]^{n_{\text{ph}}-1} [N_a - N_e(z,t)] \right] I(z,t), \end{aligned} \quad (1.56)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} I(z,t) = - \left[ \alpha + \alpha_{\text{bc}}(z,t) + \hbar\omega^2 n_{\text{ph}}^{5/2} \left( \frac{e^2}{4E_i\omega^2 c m_e \epsilon_0} \right)^{n_{\text{ph}}} [I(z,t)]^{n_{\text{ph}}-1} [N_a - N_e(z,t)] \right] I(z,t). \quad (1.57)$$

On définit la fonction

$$\beta(z,t) = \hbar\omega^2 n_{\text{ph}}^{5/2} \left( \frac{e^2}{4E_i\omega^2 c m_e \epsilon_0} \right)^{n_{\text{ph}}} [I(z,t)]^{n_{\text{ph}}-1} [N_a - N_e(z,t)], \quad (1.58)$$

ce qui permet de simplifier le système d'équations à

$$\frac{\partial}{\partial t} N_e(z,t) = \left[ \frac{\alpha}{\hbar\omega} + \frac{e^2 \gamma_{\text{eff}}}{E_i(\omega^2 + \gamma_{\text{eff}}^2) c m_e \epsilon_0} N_e(z,t) + \frac{\beta(z,t)}{n_{\text{ph}} \hbar \omega} \right] I(z,t), \quad (1.59)$$

$$\frac{\partial}{\partial z} I(z,t) = -[\alpha + \alpha_{bc}(z,t) + \beta(z,t)] I(z,t). \quad (1.60)$$

Les premiers et troisièmes termes de ces deux équations représentent le transfert de l'énergie des photons vers les électrons. L'énergie est conservée.

Les deuxièmes termes de ces équations sont reliés à l'activité des électrons dans la bande de conduction. D'une part,  $\alpha_{bc}$  décrit les pertes d'intensité dues à l'absorption d'énergie par les électrons de la bande de conduction et le deuxième terme de (1.59) décrit le transfert d'une partie de cette énergie vers des électrons de la bande de valence. Il serait tentant de relier ces termes afin d'assurer une conservation de l'énergie, mais l'énergie absorbée par les électrons n'ira pas nécessairement à d'autres électrons. Des phonons peuvent prendre une partie de cette énergie par exemple. On laisse donc ces deux termes indépendants.

On souhaite maintenant définir  $\alpha_{bc}(z,t)$ . Les pertes associées à la présence d'électrons dans la bande de conduction peuvent être décrites en fonction de la partie imaginaire de l'indice de réfraction  $\tilde{n} = \tilde{\epsilon}^{1/2}$ . Cette relation est l'inverse de la profondeur de pénétration (*skin depth*)

$$\alpha_{bc}(z,t) = \frac{2\omega}{c} \text{Im} [\tilde{n}(z,t)]. \quad (1.61)$$

On utilisera les équations (1.39) et (1.40) du modèle de Drude afin de déterminer  $\tilde{n}$ .

Finalement, on définit les conditions aux limites. On choisit une densité initiale nulle  $N_e(z,0) = 0$ . Pour l'intensité, on impose une enveloppe gaussienne pondérée par le coefficient de transmission  $T(t) = 1 - R(t)$ , où  $R(t)$  est la réflectivité. L'intensité à  $z = 0$  sera alors

$$I(0,t) = I_0 [1 - R(t)] e^{-(t/t_0)^2}, \quad (1.62)$$

où le paramètre  $t_0$  permet de varier la longueur de l'impulsion incidente et la réflectivité est calculée avec

$$R(t) = \left| \frac{\tilde{n}(0,t) - 1}{\tilde{n}(0,t) + 1} \right|^2. \quad (1.63)$$

On utilise la fluence comme variable indépendante, l'énergie par surface en  $\text{J/cm}^2$ , définie comme

$$F = \sqrt{\pi} I_0 t_0, \quad (1.64)$$

dans le cas d'une enveloppe gaussienne.

### 1.3.2 Solutions numériques

La méthode employée pour résoudre les équations (1.58) à (1.63) est la méthode des différences finies introduite à la section précédente. Une fois discrétisées, les équations différentielles s'écrivent

$$\frac{N_i^{n+1} - N_i^n}{\Delta t} = \left[ \frac{\alpha}{\hbar\omega} + \frac{e^2 \gamma_{\text{eff}}}{E_i(\omega^2 + \gamma_{\text{eff}}^2)cm_e\epsilon_0} N_i^n + \frac{\beta_i^n}{n_{\text{ph}}\hbar\omega} \right] I_i^n, \quad (1.65)$$

$$\frac{I_{i+1}^n - I_i^n}{\Delta z} = -[\alpha + \alpha_{\text{bc},i}^n + \beta_i^n] I_i^n. \quad (1.66)$$

La notation est semblable à celle utilisée à la section précédente ; les indices  $i$  indiquent le  $i^{\text{ème}}$  pas spatial de  $\Delta z$  et les indices  $n$  indiquent le  $n^{\text{ème}}$  pas temporel de  $\Delta t$ .

Avec les paramètres indiqués dans le tableau 1.2, ainsi que  $t_0 = 20$  fs,  $F = 0.0535$  J/cm<sup>2</sup>, l'intégration des équations pour  $N_e(z,t)$  et  $I(z,t)$  permet d'obtenir les figures 1.8 et 1.9. D'autres exemples de solutions sont montrés à l'annexe B.

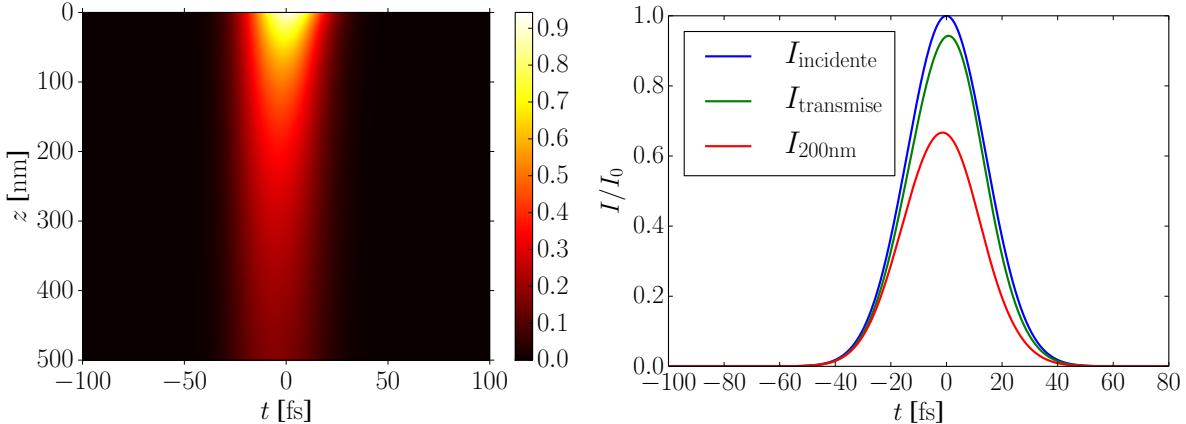


FIGURE 1.8: Intensité d'une impulsion courte ( $t_0 = 20$  fs,  $F = 0.0535$  J/cm<sup>2</sup>) en fonction du temps  $t$  et de la profondeur  $z$  lors de sa propagation dans un matériau. À droite sont montrés le profil temporel avant la réflexion,  $I_{\text{incidente}}$ , le profil temporel transmis à  $z = 0$ ,  $I_{\text{transmise}}$  et le profil temporel à  $z = 200$  nm,  $I_{200\text{nm}}$ . Les paramètres sont définis au tableau 1.2 et la discrétisation est  $\Delta t = 0.2$  fs et  $\Delta z = 5$  nm.

La densité d'ionisation maximale du matériau est très importante, car c'est ce qui va déterminer les propriétés optiques du matériau à l'interface. On effectue alors plusieurs calculs, mais en variant les paramètres  $t_0$  et  $F$  et en gardant uniquement la valeur maximale de  $N_e$  pour obtenir la figure 1.10. Tous les autres paramètres sont les mêmes que précédemment et indiqués dans le tableau 1.2.

On calcule ensuite les parties réelles et imaginaires des indices de réfraction avec les équations (1.40) et (1.39) pour obtenir la figure 1.11.

On termine avec la réflectivité à l'aide de l'équation (1.63) afin d'obtenir la figure 1.12. Pour fin de comparaison, les points de croisement entre les parties réelles et imaginaires des indices

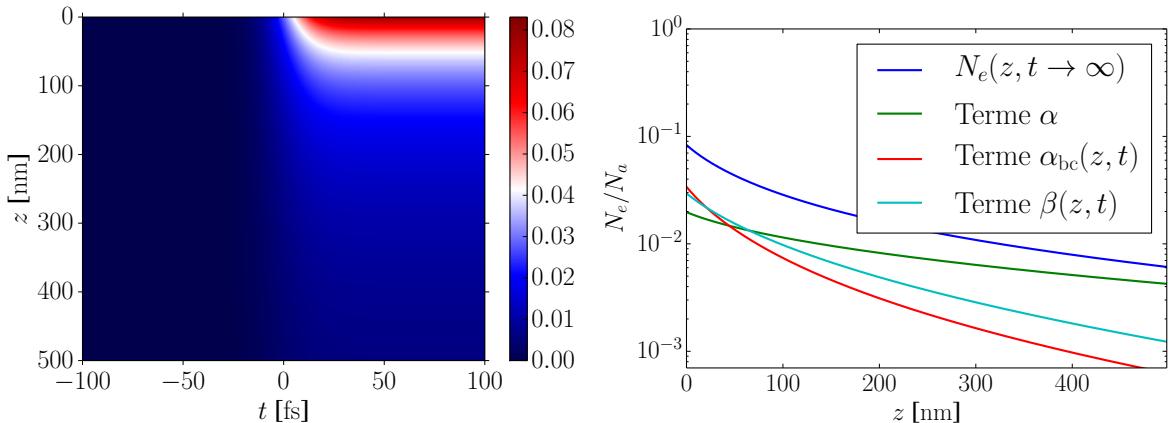


FIGURE 1.9: Ionisation entraînée par une impulsion courte ( $t_0 = 20$  fs,  $F = 0.0535$  J/cm<sup>2</sup>) en fonction du temps  $t$  et de la profondeur  $z$  lors de sa propagation dans un matériau. À droite, on compare l’ionisation finale totale en bleu et les contributions individuelles de chacun des trois termes de (1.59). La contribution de l’absorption linéaire est en vert, l’ionisation par impact est en rouge et l’ionisation multiphotonique est en cyan. Les paramètres sont définis au tableau 1.2 et la discrétisation est  $\Delta t = 0.2$  fs et  $\Delta z = 5$  nm.

Tableau 1.2: Paramètres du modèle défini aux équations (1.58) à (1.63). Ce modèle décrit la propagation d’une impulsion laser gaussienne dans un matériau avec de l’absorption linéaire, de l’ionisation par impact et de l’ionisation multiphotonique.

Paramètre	Symbol	Unités	Valeur
Durée de l’impulsion	$t_0$	s	$\sim 10^{-9} - 10^{-15}$
Fluence	$F$	J/cm <sup>2</sup>	0.01 – 0.3
Fréquence du laser	$\omega$	s <sup>-1</sup>	$2.35 \cdot 10^{15}$
Coefficient d’absorption linéaire	$\alpha$	m <sup>-1</sup>	$10^6$
Permittivité relative initiale du matériau	$\epsilon$	-	4.0
Fréquence de collision (Drude)	$\gamma$	s <sup>-1</sup>	$10^{15}$
Masse optique effective des électrons (Drude)	$m_{\text{opt}}$	-	1.0
Fréquence de collision (ionisation par impact)	$\gamma_{\text{eff}}$	s <sup>-1</sup>	$10^{16}$
Nb. de photons par ionisation multiphotonique	$n_{\text{ph}}$	-	2
Énergie d’ionisation	$E_i$	eV	3.1
Densité d’atomes ou de molécules neutres	$N_a$	m <sup>-3</sup>	$10^{29}$

de réfraction sont indiqués par des points noirs sur les figures 1.11 et 1.12. La position de ces points est calculée à l’aide de l’équation (1.46).

Certains éléments sont à retenir de ces résultats. D’abord, la figure 1.10 montre une relation presque linéaire entre la fluence et la densité d’ionisation. Puisque dans les prochains chapitres, la fluence sera remplacée par la fréquence de plasma comme variable indépendante, le lien entre ces deux variables devient plus instinctif.

Ensuite, le comportement des propriétés optiques est très important. À faible fluence, la par-

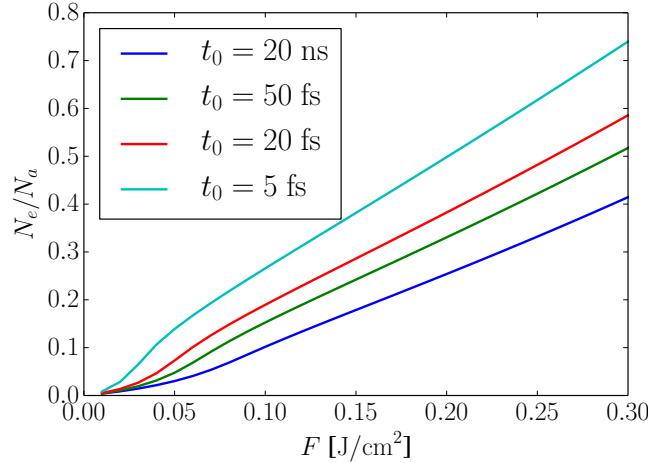


FIGURE 1.10: Proportion maximale d'électrons promus à la bande de conduction  $N_e/N_a$  en fonction de la fluence de la source laser incidente  $F$ , pour diverses durées d'impulsion  $t_0$ . Les valeurs maximales de  $N_e$  correspondent à la valeur finale à  $z = 0$ .

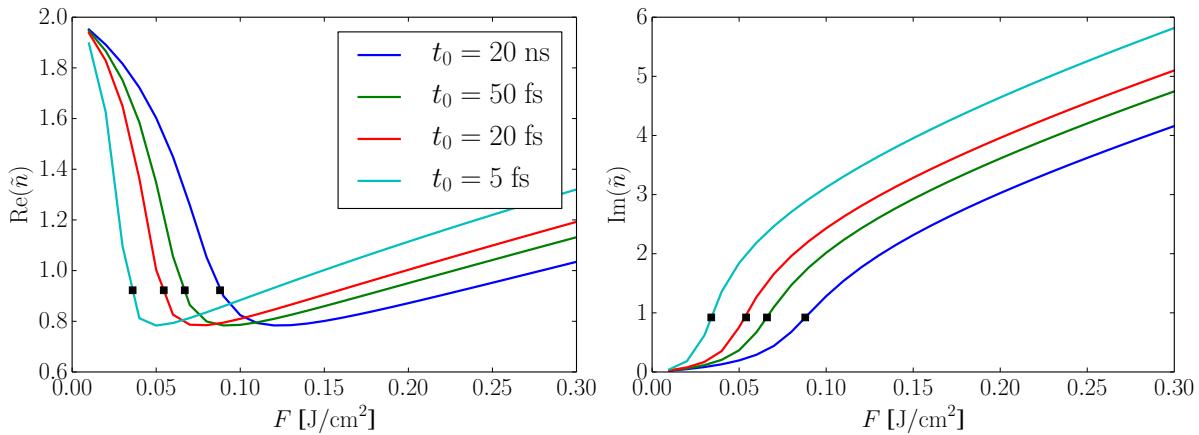


FIGURE 1.11: Parties réelles et imaginaires des indices de réfraction  $\tilde{n}$  en fonction de la fluence appliquée pour diverses durées d'impulsion  $t_0$ . Les points noirs indiquent où les parties réelles et imaginaires se croisent. Les points de croisement ont été déterminés avec l'équation (1.46).

tie réelle de l'indice de réfraction diminue rapidement et remonte tranquillement peu après  $(\omega_p/\omega)_c$ , l'endroit où la partie imaginaire de  $\tilde{n}$  devient plus grande que la partie réelle. On verra, dans le prochain chapitre, que certains réseaux de surface ont des dimensions qui dépendent de  $\text{Re}(\tilde{n})$  et que d'autres formes peuvent apparaître quand  $\text{Re}(\tilde{n}) < \text{Im}(\tilde{n})$ .

**Perspectives.** Certains aspects importants des interactions entre un faisceau laser incident et une cible ont été survolés. Les effets thermiques en premier lieu, puis la formation de plasma et les changements de propriétés optiques entraînés. Une suite logique à cette étude est de réunir ces deux parties afin d'avoir un modèle à deux températures très complet. Ce genre de modèle, à deux températures, est nommé ainsi, car il sépare les énergies (températures)

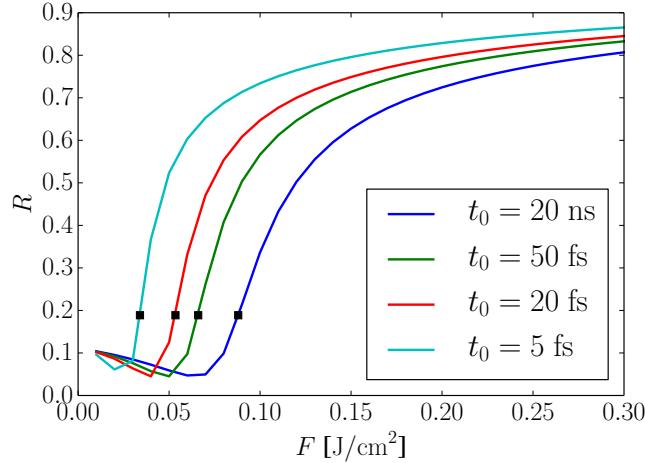


FIGURE 1.12: Réflectivités calculées avec l'équation (1.63) en fonction de la fluence appliquée pour diverses durées d'impulsion  $t_0$ . Les points noirs indiquent où les parties réelles et imaginaires des indices de réfraction se croisent. Les points de croisement ont été déterminés avec l'équation (1.46).

des électrons et du matériau en deux variables distinctes. Pour y arriver, on peut ajouter un transfert de l'énergie absorbée par les électrons vers une nouvelle variable, la température du matériau, avec un taux constant, le taux de recombinaison entre électrons et ions. Le passage d'une impulsion laser unique à un train d'impulsions est ensuite aisé en incluant la diffusion thermique entre chaque impulsion, ce qui permettrait de simuler de façon très complète l'accumulation thermique.

La formation de plasma a aussi été étudiée, car celui-ci vient drastiquement changer les propriétés optiques du matériau durant son irradiation. Les prochains chapitres s'intéressent aux variations du champ dans le plan de la surface ( $x,y$ ) et la fréquence du plasma  $\omega_p$  est très importante afin de déterminer la forme des réseaux de surface obtenue, puisque les propriétés optiques, à la surface, changent la façon dont le champ interagit avec cette surface. Il reste toutefois à relier le modèle qui sera construit dans les chapitres 3 et 4 aux calculs effectués ici. Il ne s'agit pas d'une mince tâche, mais cela permettrait d'observer l'effet de la rétroaction entre le plasma et le champ sur la forme des réseaux de surface. La dépendance entre la durée des impulsions et la formation des réseaux de surface pourrait également être simulée.



## Chapitre 2

# Des premières expériences à la théorie de Sipe-Drude

Ce second chapitre entame le sujet principal de ce document, les réseaux de surface. Leur nom plus commun est *laser-induced periodic surface structures*, ou LIPSSs. Nous débuterons ce chapitre en survolant les résultats expérimentaux les plus importants avant de classifier les différentes variations observables des LIPSSs. Nous étudierons ensuite la théorie de Sipe [15], une première approche analytique qui a été très utilisée durant les dernières décennies. Le modèle de Drude est ensuite combiné avec le modèle de Sipe afin d'inclure la contribution de la formation de plasma lors de l'interaction entre le laser et la cible.

### 2.1 Classification des réseaux de surface

Les réseaux de surfaces, ou les LIPSSs, sont des structures nanométriques et périodiques que l'on peut inscrire sur la surface d'un matériau en l'irradiant d'impulsions laser à une intensité près du seuil d'ablation. Une grande variété de formes peut ainsi être générées afin de modifier certaines propriétés d'une surface. La période des LIPSSs varie en général entre quelques dizaines de nanomètres [29, 30] et quelques micromètres [31]. Leur orientation dépend directement de l'orientation de la polarisation du faisceau laser incident.

Ce phénomène est qualifié d'universel [9], car il peut se produire sur tous les types de solides, que ce soit un métal, un semi-conducteur ou un diélectrique aussi bien sous une forme de cristal, polycristal, polymère, verre, etc. Les différentes caractéristiques (forme, période et orientation) seront toutefois différentes d'un matériau à l'autre et peuvent varier pour un même matériau selon les propriétés du laser incident.

La classification des différents types de LIPSSs est difficile, car les frontières entre deux types de structures peuvent être très floues. La classification la plus répandue se base sur un seul critère, le rapport entre la période  $\Lambda$  de la structure produite et la longueur d'onde du faisceau

incident  $\lambda$ . Pour  $\Lambda > \lambda$ , on parlera de *grooves*, pour  $\Lambda \sim \lambda$ , il s'agira plutôt de structures dénommées *low spatial frequency LIPSSs* ou LSFLs. Finalement, pour  $\Lambda \ll \lambda$ , les structures sont nommées *high spatial frequency LIPSSs* ou HSFLs. Il y a deux problèmes importants dans cette classification. D'abord, la frontière entre LSFLs et HSFLs est mal définie, rendant parfois difficile le choix de la bonne catégorie. L'autre problème est le fait que ces termes ne tiennent pas compte de l'orientation des structures alors que deux types de structures peuvent avoir la même période, mais une orientation différente, car elles sont dues à deux phénomènes distincts.

Une autre classification tient compte de l'orientation et du phénomène en jeu. Cela implique que toutes les structures d'une même catégorie devraient avoir un comportement qualitatif semblable. Alors que cette classification est habituellement utilisée pour de désigner la signature spectrale d'un type de structure précis, elle sera également utilisée dans le domaine spatial dans ce document.

**Type-s.** Les structures de type-s sont les premières à avoir été observées en 1965 [1], car ce sont les seules qui peuvent être produites avec des impulsions laser plus longues que l'échelle picoseconde [32]. Cette limite picoseconde est importante, car c'est à cette échelle de temps que le plasma généré par l'impulsion laser commence à prendre de l'expansion et que l'ablation laser se produit. Si l'impulsion laser est plus longue, il y a couplage entre les mécanismes d'ablation et d'absorption, car le laser continue à irradier le plasma en expansion.

Ces structures ont une orientation perpendiculaire au sens de la polarisation du laser incident et une période légèrement en deçà de la longueur d'onde. La période dépend de l'angle d'incidence  $\theta$  comme

$$\Lambda_s \approx \frac{\lambda}{1 + \sin(\theta)}. \quad (2.1)$$

Le  $s$  du nom type-s provient d'ailleurs de cette dépendance sinusoïdale [8]. Tel que montré dans le tableau 2.1, les structures de type-s peuvent être formées autant sur des métaux que des semi-conducteurs et des diélectriques.

Les autres types de structures n'ont pu être observés qu'avec la venue des lasers femtosecondes. Il n'y a toutefois aucune explication convaincante actuellement pour expliquer pourquoi seules les structures de type-s peuvent être formées avec des impulsions plus longues que l'échelle picoseconde.

**Type-d.** Les structures de type-d apparaissent principalement sur des diélectriques, et parfois sur des semi-conducteurs ou des métaux. La largeur de la bande interdite (l'énergie d'ionisation) semble jouer un rôle important afin de déterminer si ces structures peuvent croître ou non sur un matériau, car plus elle est grande, plus il est aisément de les fabriquer [3]. Les structures de type-d sont orientées parallèlement au sens de polarisation du laser incident et leur période

Tableau 2.1: Observations expérimentales de structures de type-s sur des métaux (M), semi-conducteurs (S) ou diélectriques (D) à incidence normale. Leur période  $\Lambda_s$  est comparée à la longueur d'onde du faisceau laser utilisée  $\lambda$  et le symbole  $\perp$  indique que l'orientation est orthogonale au sens de polarisation.

matériau	$\Lambda_s/\lambda (\perp)$	référence
TiN (M)	0.74	[33]
Acier (M)	0.88	[11]
Si (S)	0.7 - 0.96	[16, 31, 34, 35, 36, 37]
InAs (S)	0.88	[31]
InP (S)	0.74 - 0.94	[31, 38]
GaP (S)	0.85	[31]
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (D)	0.91 - 0.94	[31, 39]
Diamant (D)	0.94	[2]
ZnO (D)	0.79 - 0.91	[40]

est d'environ

$$\Lambda_d \approx \frac{\lambda}{\text{Re}(\tilde{n})}. \quad (2.2)$$

Cette période peut varier beaucoup plus que pour les autres types de structures, car  $\text{Re}(\tilde{n})$  peut grandement varier à cause de la formation du plasma durant l'irradiation laser. Le *d* du nom type-d provient du mot *dissident*, car les premiers à les observer les qualifiaient de dissidentes à avoir la période attendue de  $\Lambda/\lambda \sim 1$ . Le tableau 2.2 résume quelques observations importantes de structures de type-d.

Tableau 2.2: Observations expérimentales de structures de type-d sur des métaux (M), semi-conducteurs (S) ou diélectriques (D). Leur période  $\Lambda_d$  est comparée à la longueur d'onde du faisceau laser utilisée  $\lambda$  et le symbole // indique que l'orientation est parallèle au sens de polarisation.

matériau	$\Lambda_d/\lambda (//)$	référence
Acier allié (M)	0.15 - 0.24	[41]
Ti (M)	0.08 - 0.12	[30]
Si (S)	0.25 - 0.69	[36, 42]
ZnSe (S)	0.21	[43]
Diamant (D)	0.26	[2]
SiO <sub>2</sub> (D)	0.66 - 0.88	[3, 44, 45]

**Type-r.** Les structures de type-r apparaissent plus souvent sur des métaux mais peuvent très souvent être formées sur des semi-conducteurs et des diélectriques. Le *r* provient du mot *roughness* (rugosité) à cause de leur forte dépendance à la forme de la rugosité de surface notée par Skolski *et. al.* [22] dans leurs simulations numériques. Leur origine est toutefois toujours mal comprise et il est possible que plusieurs phénomènes différents soient en jeu lors de la

formation de structures de type-r. C'est pourquoi toutes les structures qui ont une orientation perpendiculaire au sens de la polarisation du laser incident et une période significativement plus petite que la longueur d'onde sont comprises dans la même catégorie, faute de pouvoir distinguer des mécanismes de formation différents.

Le tableau 2.3 résume quelques-unes des observations de structures de type-r.

Tableau 2.3: Observations expérimentales de structures de type-r sur des métaux (M), semi-conducteurs (S) ou diélectriques (D). Leur période  $\Lambda_r$  est comparée à la longueur d'onde du faisceau laser utilisée  $\lambda$  et le symbole  $\perp$  indique que l'orientation est orthogonale au sens de polarisation.

matériau	$\Lambda_r/\lambda (\perp)$	référence
TiN (M)	0.1 - 0.21	[29, 33, 46]
CrN (M)	0.14	[46]
Cu (M)	0.34	[47]
InP (S)	0.24 - 0.45	[31, 38]
ZnO (S)	0.25 - 0.35	[31]
GaP (S)	0.19 - 0.22	[32]
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (D)	0.34	[31]
SiO <sub>2</sub> (D)	0.2 - 0.28	[48, 49]
MgF <sub>2</sub> (D)	0.26 - 0.33	[48]
LiF (D)	0.22 - 0.32	[48]
TiO <sub>2</sub> (D)	0.21	[50]

**Les autres types.** D'autres types de structures ont pu être observés. Des structures ayant une période plus grande que la longueur d'onde du laser incident sont dites de type-g (pour *grooves*), mais il manque toujours d'appui théorique afin de se prononcer sur leur origine.

Nous avons également proposé une extension aux structures de type-d, que nous avons nommée type-m, pour *mixed* (mixtes) [23]. Ce choix vient du fait que les structures de type-d obtiennent certaines caractéristiques des structures de type-s dans un certain régime de paramètre. Les structures de type-m ont une orientation parallèle au sens de polarisation et une période  $\Lambda_m \approx \lambda$  à incidence normale. Leur dépendance avec l'angle d'incidence est toujours inconnue.

## 2.2 Le problème de Sipe

Au début des années 80, seules les structures de type-s étaient observées et certaines théories commençaient à apparaître dans la littérature, mais ne pouvaient expliquer toutes les caractéristiques connues du phénomène. Aucune ne pouvait expliquer à la fois l'orientation, la période et la dépendance de cette période avec l'angle d'incidence. Il a fallu attendre le modèle de Sipe [15] qui a solutionné les équations de Maxwell analytiquement pour une onde plane

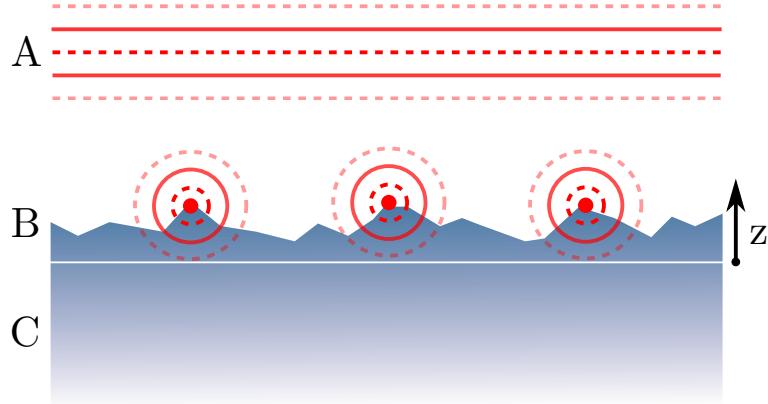


FIGURE 2.1: Géométrie du problème de Sipe. En A, une onde plane incidente se propage vers la direction  $-z$  et frappe une interface rugueuse en B. Des ondes sont diffusées et la symétrie de l'onde plane est brisée. Le volume du matériau est en C.

interagissant avec une surface rugueuse dans l'espace des fréquences pour avoir une explication théorique convaincante.

Connaissant la dépendance entre les LIPSSs, la longueur d'onde et le sens de polarisation du laser incident, il était naturel d'aborder le problème d'un point de vue électromagnétique. L'hypothèse initiale est qu'une onde plane incidente à une surface doit subir une brisure de symétrie afin d'avoir des variations dans le profil d'énergie lumineuse le long de la surface et ainsi, causer une ablation inhomogène. Les variations du champ électromagnétique le long de la surface y sont donc inscrites.

Pour obtenir ces solutions, le plan d'incidence est divisé en trois régions, représentées à la figure 2.1. La première,  $z > l$ , est le vide au dessus du matériau d'où provient une onde plane incidente. La seconde,  $0 < z < l$ , est le *selvedge* qui contient une certaine proportion de matériau et cause le bris de symétrie de l'onde plane. La dernière,  $z < 0$ , contient le volume du matériau. Cette section se limitera aux solutions finales et la démarche complète se retrouve à la référence [15].

### 2.2.1 Solution analytique.

Soit la relation de proportionnalité pour l'intensité lumineuse moyenne à  $z = 0$

$$I(\vec{k}) \propto \eta(\vec{k}; \vec{k}_i) |b(\vec{k})|, \quad (2.3)$$

où la fonction  $\eta(\vec{k}; \vec{k}_i)$  est une fonction de réponse qui décrit l'efficacité qu'a la surface rugueuse à absorber l'onde incidente de fréquence  $\vec{k}_i$  de façon inhomogène avec une fréquence  $\vec{k}$ . On doit s'attendre à obtenir des pics de fréquences préférentielles dans cette fonction afin de pouvoir les associer à des types de LIPSSs spécifiques. La fonction  $b(\vec{k})$  est l'amplitude de la transformée

de Fourier de la position de la surface dans le *selvedge* à une fréquence  $\vec{k}$  et devrait donc être pratiquement constante puisque la rugosité de surface doit être aléatoire et sans fréquence préférentielle.

La solution analytique de la fonction d'efficacité  $\eta(\vec{k}; \vec{k}_i)$  est donnée par

$$\eta(\vec{k}; \vec{k}_i) = 2\pi|v(\vec{k}_+) + v^*(\vec{k}_-)|, \quad (2.4)$$

où  $v^*$  est le complexe conjugué de  $v$ , une fonction décrite dans le cas d'une onde incidente *s*-polarisée par

$$v(\vec{k}_\pm) = \left[ h_{ss}(k_\pm)(\hat{k}_\pm \cdot \hat{y})^2 + h_{kk}(k_\pm)(\hat{k}_\pm \cdot \hat{x})^2 \right] \gamma_t |t_s(\vec{k}_i)|^2. \quad (2.5)$$

Dans le cas *p*-polarisé, cette fonction devient

$$\begin{aligned} v(\vec{k}_\pm) = & \left[ h_{ss}(k_\pm)(\hat{k}_\pm \cdot \hat{x})^2 + h_{kk}(k_\pm)(\hat{k}_\pm \cdot \hat{y})^2 \right] \gamma_t |t_x(\vec{k}_i)|^2 \\ & + h_{kz}(k_\pm)(\hat{k}_\pm \cdot \hat{y})\gamma_z \epsilon t_x^*(\vec{k}_i)t_z(\vec{k}_i) + h_{zk}(k_\pm)(\hat{k}_\pm \cdot \hat{y})\gamma_t t_x(\vec{k}_i)t_z^*(\vec{k}_i) \\ & + h_{zz}(k_\pm)\gamma_z \epsilon |t_z(\vec{k}_i)|^2. \end{aligned} \quad (2.6)$$

Les produits scalaires sont

$$(\hat{k}_\pm \cdot \hat{y}) = \frac{\sin \theta \pm \kappa_y}{\kappa_\pm} \quad ; \quad (\hat{k}_\pm \cdot \hat{x}) = \frac{\kappa_x}{\kappa_\pm} \quad (2.7)$$

$$\kappa_\pm = \sqrt{\kappa_x^2 + (\sin \theta \pm \kappa_y)^2}, \quad (2.8)$$

où toutes les fréquences  $k$  ont été réduites d'un facteur  $2\pi/\lambda$ . Le paramètre sans dimension de fréquence sera désormais  $\kappa = k\lambda/2\pi$ . Il reste à définir les fonctions  $h$ ,  $t$  et  $\gamma$ .

Les fonctions  $h$  sont

$$h_{ss}(\kappa_\pm) = \frac{2i}{\sqrt{1 - \kappa_\pm^2} + \sqrt{\epsilon - \kappa_\pm^2}}, \quad (2.9)$$

$$h_{kk}(\kappa_\pm) = \frac{2i\sqrt{(\epsilon - \kappa_\pm^2)(1 - \kappa_\pm^2)}}{\epsilon\sqrt{1 - \kappa_\pm^2} + \sqrt{\epsilon - \kappa_\pm^2}}, \quad (2.10)$$

$$h_{kz}(\kappa_\pm) = \frac{2i\kappa_\pm\sqrt{\epsilon - \kappa_\pm^2}}{\epsilon\sqrt{1 - \kappa_\pm^2} + \sqrt{\epsilon - \kappa_\pm^2}}, \quad (2.11)$$

$$h_{zk}(\kappa_\pm) = \frac{2i\kappa_\pm\sqrt{1 - \kappa_\pm^2}}{\epsilon\sqrt{1 - \kappa_\pm^2} + \sqrt{\epsilon - \kappa_\pm^2}}, \quad (2.12)$$

$$h_{zz}(\kappa_\pm) = \frac{2i\kappa_\pm^2}{\epsilon\sqrt{1 - \kappa_\pm^2} + \sqrt{\epsilon - \kappa_\pm^2}}. \quad (2.13)$$

Les fonctions  $t$  sont

$$t_s(\vec{k}_i) = \frac{2|\cos \theta|}{|\cos \theta| + \sqrt{\epsilon - (\sin \theta)^2}}, \quad (2.14)$$

$$t_x(\vec{k}_i) = \frac{2\sqrt{\epsilon - (\sin \theta)^2}}{\epsilon|\cos \theta| + \sqrt{\epsilon - (\sin \theta)^2}}, \quad (2.15)$$

$$t_z(\vec{k}_i) = \frac{2\sin \theta}{\epsilon|\cos \theta| + \sqrt{\epsilon - (\sin \theta)^2}}. \quad (2.16)$$

En utilisant

$$R = \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 1}, \quad (2.17)$$

$$F(s) = \sqrt{s^2 + 1} - s, \quad (2.18)$$

$$G(s) = \frac{\sqrt{s^2 + 4} + s}{2} - \sqrt{s^2 + 1}, \quad (2.19)$$

on peut déterminer les fonctions  $\gamma$

$$\gamma_t = \frac{2(\epsilon - 1)}{4\pi\{2 + (1 - f)(\epsilon - 1)[F(s) - RG(s)]\}}, \quad (2.20)$$

$$\gamma_z = \frac{\epsilon - 1}{4\pi\{\epsilon - (1 - f)(\epsilon - 1)[F(s) + RG(s)]\}}. \quad (2.21)$$

Il reste maintenant quatre paramètres, soient l'angle d'incidence  $\theta$ , la permittivité du matériau  $\epsilon$ , le *filling factor*  $f$  et le *shape factor*  $s$ . Les deux derniers sont reliés à la forme de la rugosité de surface. Le *filling factor* est la proportion du *selvedge* sous la surface, ou la proportion remplie. Le *shape factor* est le demi-rapport hauteur/largeur moyen des maxima de cette surface. Le couple  $(f,s)$  est généralement fixé à  $(0.1, 0.4)$ , car les solutions dépendent peu de ces deux paramètres et que ce couple a été démontré comme réaliste par Young *et. al.* [8].

À incidence normale ( $\theta = 0$ ), les équations se simplifient beaucoup, en partie parce qu'il n'y a plus de distinction entre les deux différentes polarisations incidentes. On peut alors condenser les solutions et utiliser

$$v(\vec{k}_\pm) = \frac{2i}{\sqrt{1 - \kappa_\pm^2} + \sqrt{\epsilon - \kappa_\pm^2}} \left( \frac{\kappa_y}{\kappa_\pm} \right)^2 + \frac{2i\sqrt{(\epsilon - \kappa_\pm^2)(1 - \kappa_\pm^2)}}{\epsilon\sqrt{1 - \kappa_\pm^2} + \sqrt{\epsilon - \kappa_\pm^2}} \left( \frac{\kappa_x}{\kappa_\pm} \right)^2 \gamma_t \left| \frac{2}{1 + \sqrt{\epsilon}} \right|^2, \quad (2.22)$$

ainsi que (2.20), ce qui suffit à déterminer la fonction d'efficacité  $\eta(\vec{k}; \vec{k}_i)$  avec (2.4). Ayant fixé trois des quatre paramètres,  $(f,s) = (0.1, 0.4)$  et  $\theta = 0$ , il ne reste que les propriétés optiques du matériau avec  $\epsilon$ .

Il est important de mentionner que ces solutions analytiques sont obtenues sous deux approximations importantes. D'abord, l'épaisseur du *selvedge* doit être petite par rapport à la longueur d'onde du faisceau incident,

$$l \ll \frac{\lambda}{2\pi}. \quad (2.23)$$

Ensuite, le domaine de validité des solutions est restreint aux faibles fréquences,

$$|\vec{\kappa}|l \ll 1. \quad (2.24)$$

**Résultats analytiques.** Le premier grand succès de cette théorie est l'explication des structures de type-s sur des métaux. Le premier calcul est effectué avec un métal, l'aluminium qui a un indice de réfraction de  $\tilde{n}_{Al} = 1.8 + 9.3i$  à  $\lambda = 1.06 \mu\text{m}$  [8]. La fonction d'efficacité pour  $\epsilon_{Al} = \tilde{n}_{Al}^2$  est montrée à la figure 2.2.

Dans le cas d'un métal, caractérisé par  $\text{Re}(\tilde{n}) < \text{Im}(\tilde{n})$ , une paire de pics sont présents le long de l'axe  $\kappa_x$ , près des valeurs 1 et -1. Ceux-ci correspondent à une périodicité près de la longueur d'onde  $\lambda$  et une orientation perpendiculaire au sens de la polarisation incidente, les mêmes

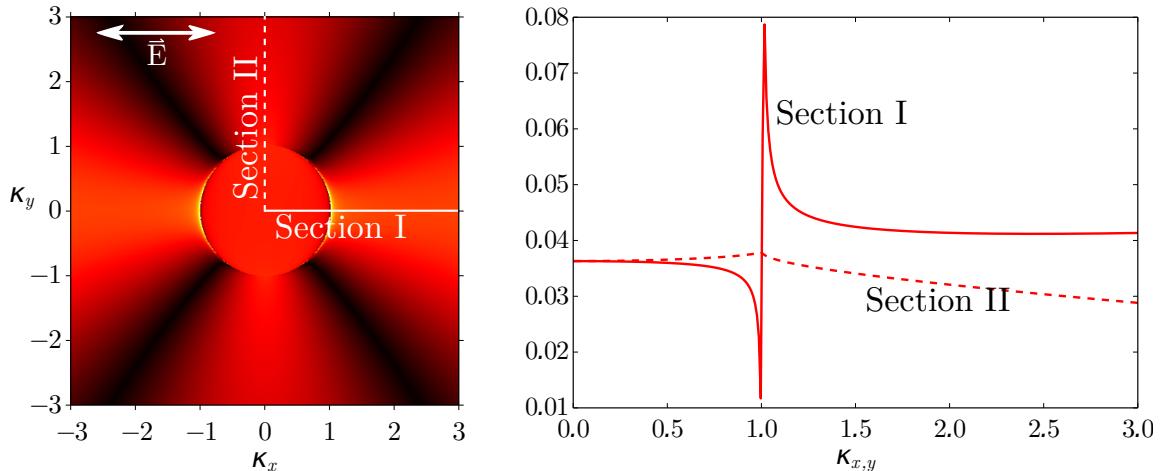


FIGURE 2.2: Fonction d’efficacité pour  $\tilde{n} = 1.8 + 9.3i$  (aluminium à  $\lambda = 1.06 \mu\text{m}$ ). Le sens de polarisation est indiqué sur la figure de gauche, ainsi que les endroits où les sections ont été faites pour la figure de droite. La section I montre un pic très mince à  $\kappa_x = 1$ , donc des structures perpendiculaires au sens de polarisation et de période  $\Lambda \sim \lambda$ , où de type-s. La section II est presque constante, signifiant qu’il n’y a pas de fréquence préférentielle dans le profil d’énergie.

caractéristiques que les structures de type-s. La même paire de pics est généralement présente et très prononcée dès que  $\text{Re}(\tilde{n}) < \text{Im}(\tilde{n})$ . Autrement dit, si le champ incident, une onde plane, frappe la surface rugueuse aléatoire d’un matériau aux propriétés optiques métalliques, l’énergie sera déposée avec une fréquence préférentielle de  $\kappa_x \sim 1$ . Si la profondeur d’ablation dépend de ce profil d’énergie périodique, ce dernier sera inscrit dans la forme de la surface, formant des structures de type-s.

Deuxième grande réussite de cette théorie, la prédiction des structures de type-d qui furent confirmées expérimentalement plus tard, avec la venue des lasers femtosecondes. Elles sont présentes pour des matériaux faiblement absorbants,  $\text{Re}(\tilde{n}) > \text{Im}(\tilde{n})$ , comme pour le silicium. Sa fonction d’efficacité est montrée à la figure 2.3.

Tirer des conclusions claires de la fonction d’efficacité dans le cas  $\text{Re}(\tilde{n}) > \text{Im}(\tilde{n})$  est difficile, puisque trois maxima correspondant aux structures de type-s, type-d et type-r sont souvent présents. Généralement, aucune conclusion n’est tirée des pics de type-r à cause de la restriction des équations de Sipe aux faibles fréquences. Faute d’un meilleur critère, on choisit ensuite la paire de pics ayant la plus grande amplitude pour prédire les structures finales de la surface ablatée, soit les pics des structures de type-d quand  $\text{Re}(\tilde{n}) > \text{Im}(\tilde{n})$ .

Cette théorie prédit alors principalement des structures de type-s sur les métaux et des structures de type-d sur des diélectriques. Mais cette théorie ne peut expliquer l’apparition des structures de type-d sur des métaux et ce n’est qu’au dernier chapitre que nous pourrons aborder ce cas précis.

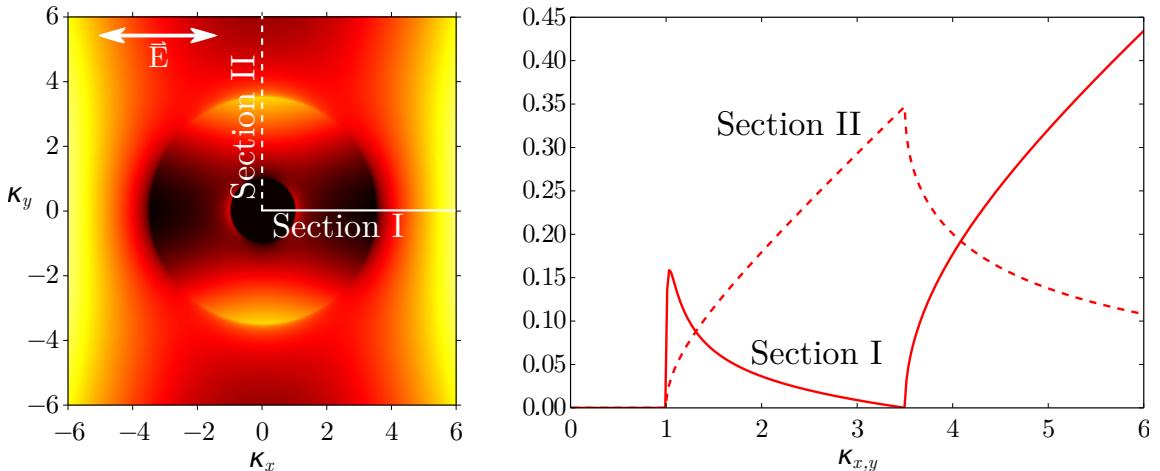


FIGURE 2.3: Fonction d’efficacité pour  $\tilde{n} = 3.5 + 10^{-4}i$  (silicium à  $\lambda = 1.06 \mu\text{m}$ ). Le sens de polarisation est indiqué sur la figure de gauche, ainsi que les endroits où les sections ont été faites pour la figure de droite. La section I suggère des structures de type-s et type-r et la section II suggère des structures de type-d.

Pour expliquer l’apparition de structures de type-s sur un matériau peu absorbant, l’hypothèse est que la formation de plasma lors de l’irradiation laser donne un comportement métallique au matériau en le rendant très absorbant. C’est pourquoi le modèle de Drude a été récemment ajouté pour former le modèle Sipe-Drude [16].

### 2.2.2 Contribution du plasma

Les propriétés optiques d’un matériau ne restent pas constantes lors de l’irradiation laser, ce qui est particulièrement vrai près du seuil d’ablation laser. En ajoutant la contribution du modèle de Drude à la permittivité du matériau, on peut tenir compte du changement de comportement des électrons excités.

L’équation (1.40) décrit ces changements de propriétés optiques à l’aide de deux nouveaux paramètres. Le premier est la fréquence du plasma réduite  $\omega_p/\omega$  qui est reliée à la densité du plasma (voir l’équation (1.39)). Le second paramètre est la fréquence de collision réduite  $\gamma/\omega$  qui est reliée à la dynamique des électrons de la bande de conduction. Généralement, ce dernier paramètre est fixé pour un matériau donné et seule la fréquence de plasma est variée. La façon analogue de varier ce paramètre en laboratoire serait d’augmenter la fluence du laser.

Pour reprendre l’exemple du silicium, on fixe la fréquence de collision  $\gamma/\omega$  à 0.39 et  $\tilde{n} = 3.692 + 0.065i$ , les valeurs acceptées pour  $\lambda = 800 \text{ nm}$  [16, 27]. Les parties réelles et imaginaires de l’indice de réfraction, selon le modèle de Drude suivront alors les courbes de la figure 2.4. En utilisant ces valeurs, on peut calculer à nouveau les solutions de Sipe pour différentes fréquences de plasma et obtenir les figures 2.5 à 2.7.

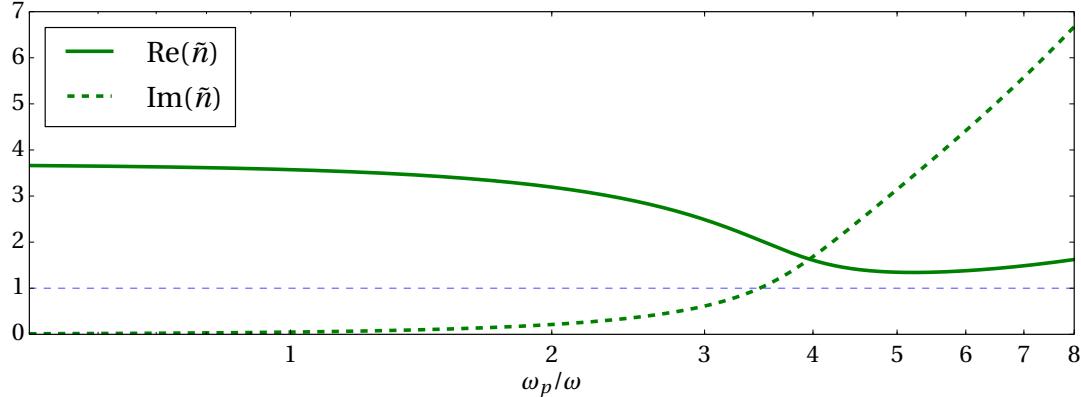


FIGURE 2.4: Parties réelle et imaginaire de l’indice de réfraction  $\tilde{n} = \tilde{\epsilon}^{1/2}$  calculées avec le modèle de Drude avec les paramètres  $\epsilon = 13.63 + 0.48i$  et  $\gamma/\omega = 0.39$ . Les deux parties se croisent à  $(\omega_p/\omega)_c = 3.963$ .

À faible fréquence de plasma, les pics correspondant aux structures parallèles de type-d sont dominants. Autour de  $(\omega_p/\omega)_c$ , défini comme la fréquence de plasma réduite où les parties réelle et imaginaire de l’indice de réfraction s’égalent (voir l’équation (1.46)), on observe une transition rapide et les pics correspondant aux structures perpendiculaires de type-s deviennent dominants. Les divergences aux grandes valeurs de  $\kappa_x$  sont de plus en plus prononcées, ce qui pourrait causer l’apparition de structures de type-r, mais comme dit précédemment, cette théorie ne permet pas de se prononcer sur ce cas précis, car elle est invalide aux grandes fréquences.

La formation des structures de type-s sur les diélectriques peut alors être expliquée avec l’aide du modèle de Drude et de la formation d’un plasma dense durant l’irradiation laser. Les structures de type-d seraient donc formées lorsque le seuil d’ablation est atteint avant  $(\omega_p/\omega)_c$ , quand  $\text{Re}(\tilde{n}) > \text{Im}(\tilde{n})$ . Au-delà du seuil critique, les structures de type-s seraient privilégiées.

**Limitations.** L’absence de solution dans le domaine spatial est un problème, vu le manque de clarté des solutions dans le domaine des fréquences. Les résultats semblent concorder qualitativement avec les expériences sur certains éléments, mais il n’est pas évident de tirer des conclusions solides. Est-ce que les maxima divergents aux grandes valeurs de  $\kappa_x$  sont responsables des structures de type-r ? Et quand les pics des structures de type-d et type-s sont présents, la forme finale des LIPSSs est difficile à prévoir.

La restriction sur l’épaisseur du selvedge est également un problème, car cette méthode est alors limitée à une seule impulsion. On ne peut faire ces calculs pour un train d’impulsions, la zone du selvedge gagnerait en amplitude entre chacune des impulsions et la condition (2.23) serait brisée.

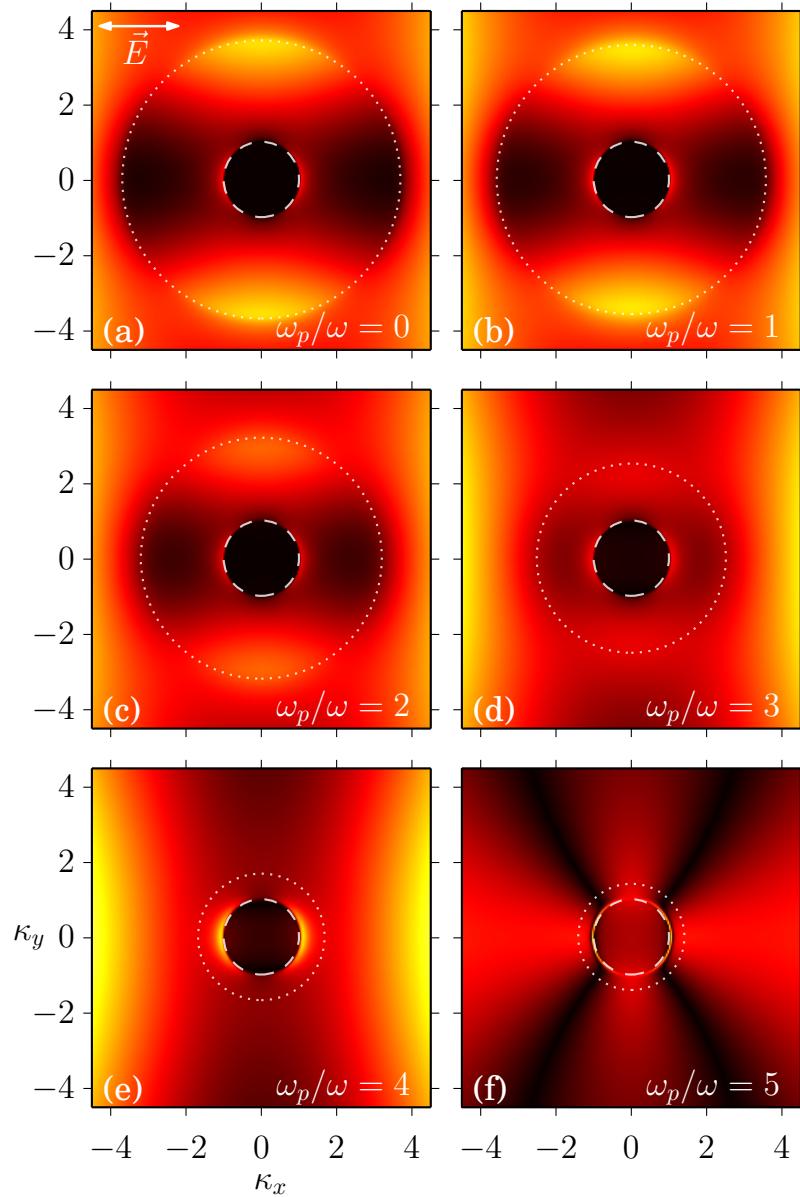


FIGURE 2.5: Solutions analytiques de la fonction d'efficacité pour différentes valeurs de  $\omega_p/\omega$ . Les indices de réfraction correspondant sont  $\tilde{n} = 3.692 + 0.065i$  (a),  $3.564 + 0.115i$  (b),  $3.2 + 0.287i$  (c),  $2.512 + 0.702i$  (d),  $1.68 + 1.755i$  (e),  $1.41 + 3.171i$  (f). Le sens de polarisation est indiqué en (a).

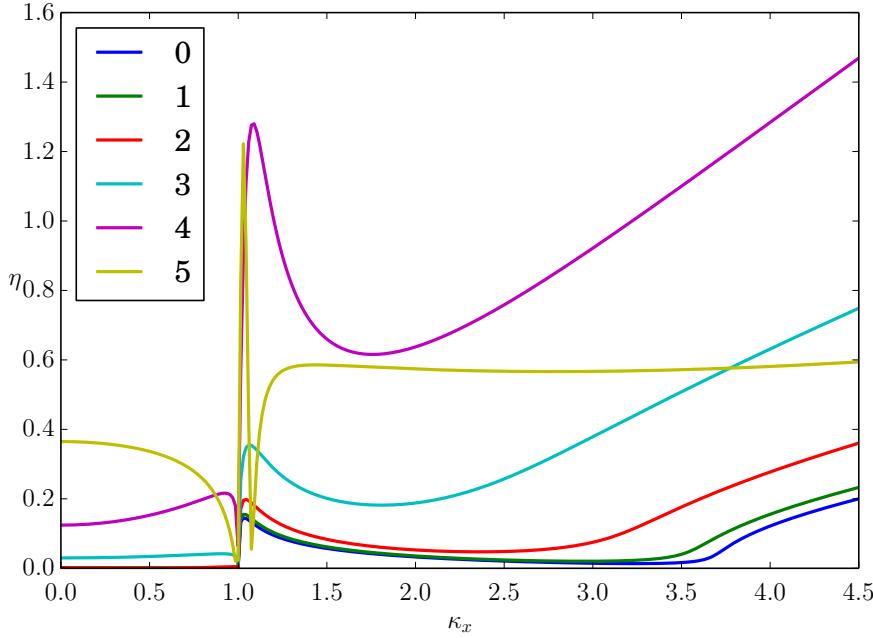


FIGURE 2.6: Section le long de  $\kappa_x > 0$  et  $\kappa_y = 0$  de la figure 2.5. Les valeurs de  $\omega_p/\omega$  sont indiquées dans la légende. Le pic correspondant aux structures de type-s s'amplifie considérablement pour  $\omega_p/\omega > (\omega_p/\omega)_c = 3.963$ .

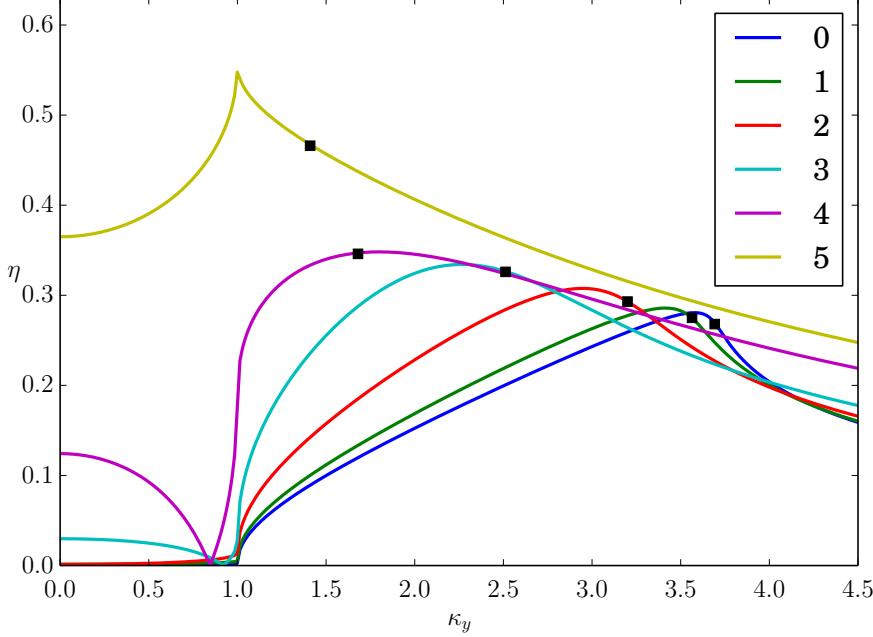


FIGURE 2.7: Section le long de  $\kappa_y > 0$  et  $\kappa_x = 0$  de la figure 2.5. Les valeurs de  $\omega_p/\omega$  sont indiquées dans la légende. Les carrés noirs indiquent sur chaque courbe la fréquence  $\kappa_y = \text{Re}(\tilde{n})$ . Ils se retrouvent près du maximum de la fonction, ce qui indique que les structures de type-d ont une période qui suit une relation proche de  $\Lambda \sim \lambda/\text{Re}(\tilde{n})$ .

Les solutions ne sont disponibles qu'à  $z = 0$  et il serait intéressant d'avoir la solution en profondeur. Si la forme du champ est différente à la profondeur d'ablation, il est probable que la forme des LIPSSs suive plutôt cette distribution là, et non celle de  $z = 0$ .



## Chapitre 3

# Interactions électrodynamiques de surface

Dans le chapitre précédent, nous avons atteint les limites de la méthode analytique de Sipe. C'est pourquoi, dans ce chapitre, nous nous tournons vers une méthode numérique, basée sur la discrétisation des équations de Maxwell. Nous utiliserons cette méthode afin de simuler l'interaction entre une onde plane incidente et une surface rugueuse. Les différences avec la méthode analytique seront discutées et les avantages serons mis en lumière. Finalement, l'étude des interactions autour d'une inhomogénéité de surface unique permettra de mettre en lumière certains éléments précis du phénomène. Certains résultats de ce chapitre sont publiés dans [23].

### 3.1 Discrétisation des équations de Maxwell

La méthode des différences finies a été introduite au premier chapitre et sera utilisée à nouveau dans ce chapitre et le suivant. Dans le cas des équations de Maxwell, le nom particulier de la méthode est *finite-difference time-domain* ou FDTD [20, 21]. Ce choix de méthode est principalement motivé par la récente démonstration de la ressemblance entre les solutions FDTD et analytique dans les contraintes imposées par cette dernière [22]. Ainsi, à  $z = 0$  (le plan séparant le *selvedge* et le volume tel que représenté à la figure 2.1), dans le domaine des fréquences et pour les petites valeurs de fréquences, ces deux méthodes s'équivalent très bien. Mais la méthode FDTD permet des solutions à  $z > 0$ , aux grandes fréquences et dans le domaine spatial.

L'information du champ à  $z > 0$  est très importante, car on verra que le champ varie très rapidement le long de l'axe  $z$  juste sous la surface. Si la profondeur d'ablation est grande, il est probable que ce soit la forme du champ prise à cette grande profondeur qui soit importante, et non la forme du champ dans une partie du matériau qui sera expulsée de la surface. Un autre avantage majeur est de ne pas être restreint à un *selvedge* très mince. Nous tirerons profit de

cet avantage dans le dernier chapitre, car nous modifierons la forme de cette surface dans une région qui doit pouvoir avoir une épaisseur de l'ordre de  $\lambda$ .

Les calculs FDTD sont effectués avec le logiciel libre Meep [51].

**Équations de Maxwell.** La forme différentielle standard des équations de Maxwell dans le vide est

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0}, \quad (3.1)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0, \quad (3.2)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}, \quad (3.3)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{B} = \mu_0 \left( \vec{J} + \epsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \right). \quad (3.4)$$

Le champ électrique et la densité de flux magnétique sont respectivement dénotés par  $\vec{E}$  et  $\vec{B}$ . La permittivité du vide est  $\epsilon_0$ , la perméabilité du vide est  $\mu_0$ , la densité de charges libres est  $\rho$  et la densité de courant électrique est  $\vec{J}$ .

Quelques modifications peuvent être apportées avant de discréteriser ces équations. D'abord, on suppose un milieu sans charge libre, permettant d'avoir  $\rho = 0$ . Ensuite, on utilise plutôt le champ magnétique défini comme

$$\vec{H} = \frac{1}{\mu_0} \vec{B} - \vec{M}, \quad (3.5)$$

où  $\vec{M}$  est la densité de moment magnétique que nous posons nulle.

Afin de tenir compte du milieu et de sa réponse au champ, on utilise la loi d'Ohm  $\vec{J} = \sigma \vec{E}$  avec la conductivité  $\sigma$  qui peut être écrite en fonction de la partie imaginaire de la permittivité complexe  $\tilde{\epsilon}$  de ce milieu. La notation exacte est clarifiée dans le tableau 3.1.

Tableau 3.1: Notation concernant la permittivité.

Objet	Symbol	Unités	Valeur ou expression
Permittivité du vide	$\epsilon_0$	$\frac{\text{A}^2 \text{s}^4}{\text{m}^3 \text{kg}}$	$8.854 \cdot 10^{-12}$
Permittivité relative complexe	$\tilde{\epsilon}$	$\epsilon_0$	$\tilde{\epsilon} = \epsilon' + i\epsilon''$
Partie réelle relative	$\epsilon'$	$\epsilon_0$	-
Partie imaginaire relative	$\epsilon''$	$\epsilon_0$	-
Conductivité électrique	$\sigma$	$\frac{\text{A}^2 \text{s}^3}{\text{m}^3 \text{kg}}$	$\sigma = \epsilon_0 \epsilon'' \omega$

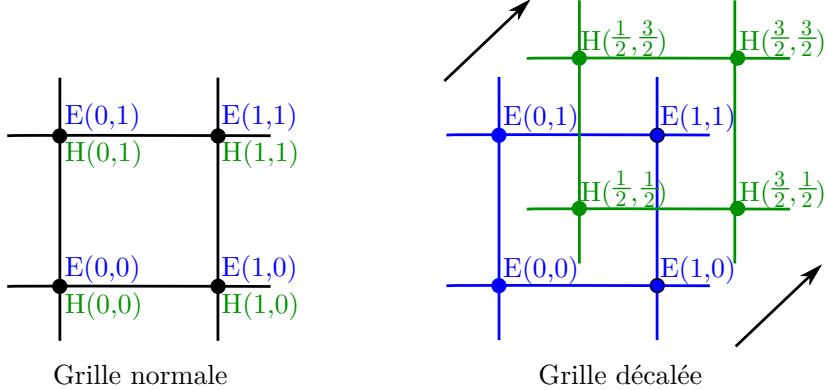


FIGURE 3.1: Comparaison entre une grille normale et une grille décalée en deux dimensions. À droite, les champs  $E$  et  $H$  ne sont pas définis aux même points.

La nouvelle forme des équations de Maxwell prêtes à être discrétisées est alors

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0, \quad (3.6)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{H} = 0, \quad (3.7)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial \vec{H}}{\partial t}, \quad (3.8)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \sigma \vec{E} + \epsilon' \epsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t}. \quad (3.9)$$

### 3.1.1 Algorithme de Yee

La discrétisation des équations de Maxwell par la méthode des différences finies se fait de façon similaire à celle du chapitre 1. La différence principale est l'utilisation de grilles décalées (*staggered grids*) qui permet une plus grande stabilité et d'imposer des solutions à divergence nulle. Une grille décalée signifie que deux quantités discrétisées, disons des champs  $E$  et  $H$ , ne seront pas définis sur les mêmes points de l'espace. Le champ  $E$  peut être défini sur toutes les paires de coordonnées  $(i,j)$  entières d'un plan et le champ  $H$  peut être défini sur les demi-entiers des coordonnées. Cet exemple est illustré à la figure 3.1.

Les champs des équations de Maxwell  $\vec{E}$  et  $\vec{H}$  sont vectoriels et dans la méthode FDTD, chacune des trois composantes spatiales de ces deux champs est décalée d'un demi-pas spatial par rapport aux autres. Ainsi, les composantes  $E_x, E_y$  et  $E_z$  ne seront pas définis sur les mêmes points, mais distribués sur les arêtes d'un cube représentant le plus petit volume pouvant être défini dans un espace tridimensionnel discret, une cellule. Les composantes  $H_x, H_y$  et  $H_z$  seront plutôt placées sur les faces de cette cellule. Dans le cas précis de la méthode FDTD, on parle de la cellule de Yee [20], représentée à la figure 3.2.

Les champs  $\vec{E}$  et  $\vec{H}$  sont également décalés dans le temps. On avance donc dans le temps avec des demi-pas, commençant par le calcul de  $\vec{E}$  pour un temps  $n\Delta t$  et on avance vers

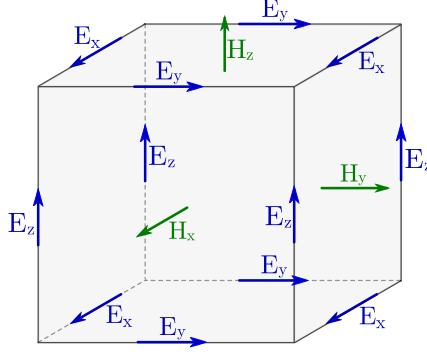


FIGURE 3.2: Cellule de Yee utilisée dans les calculs FDTD. Les composantes du champ électrique sont définies sur les arêtes de la cellule et les composantes du champ magnétique sont définies sur ses faces.

$(n+1/2)\Delta t$  pour calculer  $\vec{H}$  à partir du résultat de  $\vec{E}$  au demi-pas précédent. On recommence avec le calcul de  $\vec{E}$  au temps  $(n+1)\Delta t$  en utilisant la solution de  $\vec{H}$  au demi-pas précédent et ainsi de suite.

Avant de commencer la discréétisation, on introduit une notation similaire à celle du chapitre 1 : une composante, disons  $E_x$ , au  $n$ ième pas temporel de  $\Delta t$  et aux nombres de pas spatiaux  $(i,j,k)$  de grandeur  $\Delta x$ ,  $\Delta y$  et  $\Delta z$  est dénotée  $E_x|_{i,j,k}^n$ . Ainsi, avec des différences finies centrées, définies à l'équation (1.34), l'équation (3.9), qui se décompose en trois équations

$$\frac{\partial H_z}{\partial y} - \frac{\partial H_y}{\partial z} = \sigma E_x + \epsilon' \epsilon_0 \frac{\partial E_x}{\partial t}, \quad (3.10)$$

$$\frac{\partial H_x}{\partial z} - \frac{\partial H_z}{\partial x} = \sigma E_y + \epsilon' \epsilon_0 \frac{\partial E_y}{\partial t}, \quad (3.11)$$

$$\frac{\partial H_y}{\partial x} - \frac{\partial H_x}{\partial y} = \sigma E_z + \epsilon' \epsilon_0 \frac{\partial E_z}{\partial t}, \quad (3.12)$$

devient

$$\begin{aligned} \frac{H_z|_{i,j+1,k+1/2}^{n+1/2} - H_z|_{i,j,k+1/2}^{n+1/2}}{\Delta y} - \frac{H_y|_{i,j+1/2,k+1}^{n+1/2} - H_y|_{i,j+1/2,k}^{n+1/2}}{\Delta z} = \\ \sigma E_x|_{i,j+1/2,k+1/2}^{n+1/2} + \epsilon' \epsilon_0 \frac{E_x|_{i,j+1/2,k+1/2}^{n+1} - E_x|_{i,j+1/2,k+1/2}^n}{\Delta t}, \end{aligned} \quad (3.13)$$

$$\begin{aligned} \frac{H_x|_{i+1/2,j,k+1}^{n+1/2} - H_x|_{i+1/2,j,k}^{n+1/2}}{\Delta z} - \frac{H_z|_{i+1,j,k+1/2}^{n+1/2} - H_z|_{i,j,k+1/2}^{n+1/2}}{\Delta x} = \\ \sigma E_y|_{i+1/2,j,k+1/2}^{n+1/2} + \epsilon' \epsilon_0 \frac{E_y|_{i+1/2,j,k+1/2}^{n+1} - E_y|_{i+1/2,j,k+1/2}^n}{\Delta t}, \end{aligned} \quad (3.14)$$

$$\begin{aligned} \frac{H_y|_{i+1,j+1/2,k}^{n+1/2} - H_y|_{i,j+1/2,k}^{n+1/2}}{\Delta x} - \frac{H_x|_{i+1/2,j+1,k}^{n+1/2} - H_x|_{i+1/2,j,k}^{n+1/2}}{\Delta y} = \\ \sigma E_z|_{i+1/2,j+1/2,k}^{n+1/2} + \epsilon' \epsilon_0 \frac{E_z|_{i+1/2,j+1/2,k}^{n+1} - E_z|_{i+1/2,j+1/2,k}^n}{\Delta t}. \end{aligned} \quad (3.15)$$

Dans l'éventualité où une composante doit être déterminée dans un point de l'espace ou du temps où elle n'est pas connue, comme c'est le cas de  $E_x|_{i,j+1/2,k+1/2}^{n+1/2}$  dans (3.13) qui n'est connue qu'aux indices de temps entiers, on fait une moyenne entre les deux plus proches voisins, tel que

$$E_x|_{i,j+1/2,k+1/2}^{n+1/2} = \frac{E_x|_{i,j+1/2,k+1/2}^{n+1} + E_x|_{i,j+1/2,k+1/2}^n}{2}. \quad (3.16)$$

Ainsi, on peut déterminer chaque composante de  $\vec{E}|^{n+1}$  à partir de  $\vec{E}|^n$  et  $\vec{H}|^{n+1/2}$  explicitement. Par exemple, avancer  $E_x|^n$  dans le temps se fait avec

$$\begin{aligned} E_x|_{i,j+1/2,k+1/2}^{n+1} &= \frac{2\epsilon'\epsilon_0 - \sigma\Delta t}{2\epsilon'\epsilon_0 + \sigma\Delta t} E_x|_{i,j+1/2,k+1/2}^n \\ &\quad + \frac{2\Delta t/\Delta y}{2\epsilon'\epsilon_0 + \sigma\Delta t} (H_z|_{i,j+1/2,k+1/2}^{n+1/2} - H_z|_{i,j,k+1/2}^{n+1/2}) \\ &\quad + \frac{2\Delta t/\Delta z}{2\epsilon'\epsilon_0 + \sigma\Delta t} (H_y|_{i,j+1/2,k+1}^{n+1/2} - H_y|_{i,j+1/2,k}^{n+1/2}). \end{aligned} \quad (3.17)$$

Les solutions pour les deux autres composantes se trouvent de façon similaire.

Afin d'avancer  $\vec{H}$  dans le temps, on utilise (3.8), qui se décompose en trois équations

$$\frac{\partial E_z}{\partial y} - \frac{\partial E_y}{\partial z} = -\mu_0 \frac{\partial H_x}{\partial t}, \quad (3.18)$$

$$\frac{\partial E_x}{\partial z} - \frac{\partial E_z}{\partial x} = -\mu_0 \frac{\partial H_y}{\partial t}, \quad (3.19)$$

$$\frac{\partial E_y}{\partial x} - \frac{\partial E_x}{\partial y} = -\mu_0 \frac{\partial H_z}{\partial t}, \quad (3.20)$$

et devient

$$\begin{aligned} \frac{E_z|_{i+1/2,j+1/2,k}^n - E_z|_{i+1/2,j-1/2,k}^n}{\Delta y} - \frac{E_y|_{i+1/2,j,k+1/2}^n - E_y|_{i+1/2,j,k-1/2}^n}{\Delta z} \\ = \mu_0 \frac{H_x|_{i+1/2,j,k}^{n+1/2} - H_x|_{i+1/2,j,k}^{n-1/2}}{\Delta t}, \end{aligned} \quad (3.21)$$

$$\begin{aligned} \frac{E_x|_{i,j+1/2,k+1/2}^n - E_x|_{i,j+1/2,k-1/2}^n}{\Delta z} - \frac{E_z|_{i+1/2,j+1/2,k}^n - E_z|_{i-1/2,j+1/2,k}^n}{\Delta x} \\ = \mu_0 \frac{H_y|_{i,j+1/2,k}^{n+1/2} - H_y|_{i,j+1/2,k}^{n-1/2}}{\Delta t}, \end{aligned} \quad (3.22)$$

$$\begin{aligned} \frac{E_y|_{i+1/2,j,k+1/2}^n - E_y|_{i-1/2,j,k+1/2}^n}{\Delta x} - \frac{E_x|_{i,j+1/2,k+1/2}^n - E_x|_{i,j-1/2,k+1/2}^n}{\Delta y} \\ = \mu_0 \frac{H_z|_{i,j,k+1/2}^{n+1/2} - H_z|_{i,j,k+1/2}^{n-1/2}}{\Delta t}. \end{aligned} \quad (3.23)$$

Pour avancer une composante dans le temps, disons  $H_x|^{n-1/2}$ , on utilise

$$\begin{aligned} H_x|_{i+1/2,j,k}^{n+1/2} &= H_x|_{i+1/2,j,k}^{n-1/2} - \frac{\Delta t}{\mu_0 \Delta y} \left( E_z|_{i+1/2,j+1/2,k}^n - E_z|_{i+1/2,j-1/2,k}^n \right) \\ &\quad + \frac{\Delta t}{\mu_0 \Delta z} \left( E_y|_{i+1/2,j,k+1/2}^n - E_y|_{i+1/2,j,k-1/2}^n \right). \end{aligned} \quad (3.24)$$

Tel que mentionné plus haut, le choix des grilles décalées permet une plus grande stabilité de la méthode, mais c'est n'est pas l'unique avantage. Il est possible de démontrer que les divergences des équations (3.6) et (3.7) restent inchangées quand on leur applique une avancée temporelle avec le schéma de différences finies qui vient d'être développé. Si on impose une condition initiale avec des divergences nulles, elle resteront nulles tout au long de l'avancée temporelle. C'est pourquoi on peut simplement ignorer les équations de divergence grâce à ce schéma précis.

**Précisions sur la méthode FDTD.** Grâce à l'invariance d'échelle des équations de Maxwell, toutes les distances spatiales des simulations à venir sont normalisées par rapport à la longueur d'onde de la source de lumière. On choisit également de normaliser tous les temps avec l'inverse de sa fréquence  $f = c/\lambda$ . Les discrétisations spatiales et temporelles sont alors faites avec les pas normalisés

$$\delta x, \delta y, \delta z = \frac{\Delta x}{\lambda}, \frac{\Delta y}{\lambda}, \frac{\Delta z}{\lambda} \quad ; \quad \delta t = f \Delta t. \quad (3.25)$$

La condition de stabilité de l'algorithme est alors [21]

$$\delta t < \left[ \frac{1}{\delta x^2} + \frac{1}{\delta y^2} + \frac{1}{\delta z^2} \right]^{1/2}. \quad (3.26)$$

Finalement, les conditions frontières ont pour tâche d'éliminer toutes les réflexions artificielles provenant de celles-ci. Ces frontières ne doivent pas influencer les mesures à l'intérieur du domaine de simulation. La méthode la plus répandue afin d'éliminer ces réflexions non physiques est d'ajouter une région absorbante aux frontières du domaine, des *perfectly matched layers* (PMLs). Cette région doit être suffisamment absorbante pour réduire au minimum son épaisseur nécessaire afin d'avoir un champ nul à sa limite extérieure et ainsi réduire le nombre d'opérations à effectuer dans le calcul numérique. Plus de détails sont disponibles à la référence [52].

## 3.2 Application au problème de Sipe

Le problème de Sipe a été défini au chapitre précédent comme le problème de déterminer la distribution spatiale qu'obtient une onde plane après avoir traversé une surface rugueuse de permittivité complexe  $\tilde{\epsilon}$ . Un domaine de simulation doit d'abord être défini avant d'y introduire une géométrie représentant ce scénario.

### 3.2.1 Domaine de simulation

Le domaine de simulation doit respecter plusieurs critères, à la fois macroscopiques et microscopiques. D'abord, il doit être suffisamment grand pour pouvoir observer l'ensemble du phénomène, i. e. plusieurs périodes dans le cas d'un phénomène périodique comme celui-ci. Puis, la taille des cellules doit être assez petite pour résoudre correctement les plus petites oscillations du champ pouvant apparaître durant le calcul. La méthode FDTD est très lourde en mémoire et en temps de calcul, la mémoire nécessaire suit une relation cubique avec la précision (doubler la précision multiplie par  $2^3 = 8$  la mémoire requise) et le temps de calcul augmente avec la quatrième puissance, car  $\delta t$  doit également être réduit afin de respecter la condition de stabilité (3.26). Malgré cela, les calculs effectués dans ce chapitre peuvent être faits en quelques minutes avec un ordinateur de puissance modeste.

**Grille de calcul.** Les solutions analytiques de Sipe indiquent que, dans le plan  $(x,y)$ , la période des variations les plus étendues du champ qui nous intéressent est environ égale à la longueur d'onde de la source laser  $\lambda$ . Le domaine de simulation devra donc pouvoir couvrir une région suffisamment grande pour contenir plusieurs périodes, toujours dans le plan  $(x,y)$ . Pour la dimension en  $z$ , il suffit d'avoir plus que les profondeurs d'ablation laser typiques (de l'ordre de la centaine de nanomètres en pratique). La taille du domaine choisie est alors de  $[X_S, Y_S, Z_S] = [30\lambda, 30\lambda, 6\lambda]$ . Pour un laser de 800 nm, cela correspond à  $[24, 24, 4.8] \mu\text{m}$ .

Les variations du champ peuvent être très petites, si on se fie aux résultats expérimentaux. Les structures de type-r peuvent être aussi petites que  $\lambda/10$  [29] et la condition jugée généralement acceptable afin qu'une ondulation soit bien résolue dans un espace discret est de 10 points au minimum pour une période complète. Or, une résolution de  $\lambda/100$  n'est pas possible, car cela demanderait trop de mémoire. Une résolution de  $\lambda/40$  est accessible, mais la comparaison avec une résolution de  $\lambda/20$  montre des résultats très semblables. Afin de minimiser les temps de calculs, on choisit alors une discrétisation de  $\delta x = \delta y = \delta z = \delta = \lambda/20$ . La grille complète du domaine de simulation a alors, en nombre de cellules des dimensions de  $[600, 600, 120]$ , sans compter le volume que les PMLs occuperont.

Pour respecter la condition de stabilité (3.26), la discrétisation temporelle doit être plus petite qu'une certaine valeur qui dépend de la discrétisation spatiale, qui est  $\delta t < 1/(20\sqrt{3})$ . Ainsi, les simulations sont effectuées avec  $\delta t = 1/40$ , signifiant 40 pas par cycle optique. Le temps d'une simulation est fixé à  $T_S = 10$  cycles optiques, portant le nombre de pas temporels à 400.

**Géométrie.** La géométrie est définie par la permittivité  $\tilde{\epsilon}$ . Si la permittivité vaut 1 pour une cellule donnée, celle-ci contient du vide, sinon, elle contient du matériel. La géométrie choisie est représentée à la figure 3.3. La région  $z \geq 0$  est entièrement remplie de matériau,

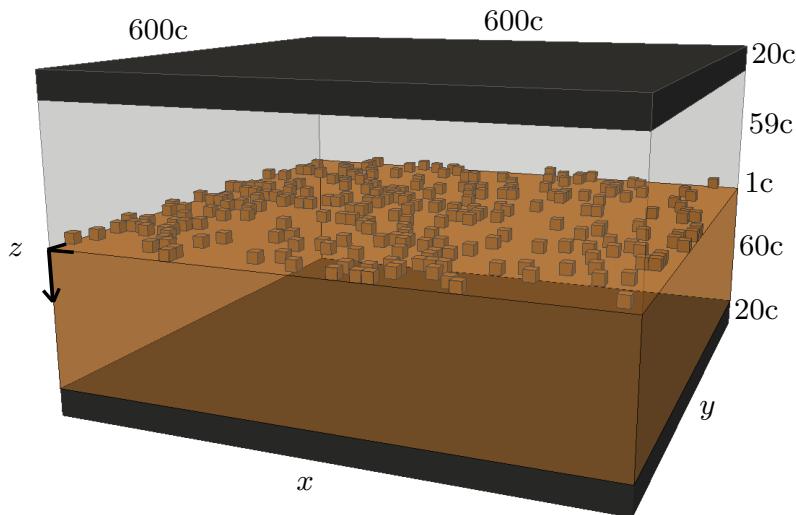


FIGURE 3.3: Géométrie utilisée afin de résoudre numériquement le problème de Sipe avec la méthode FDTD. Les dimensions spatiales sont indiquées en nombre de cellules. Le matériau est placé à  $z > 0$ , en orange. La zone grise est vide et la couche d'une cellule d'épaisseur à l'interface contient 10% de cellules remplies, choisies aléatoirement. En noir, les PMLs sont montrés pour les limites horizontales, mais les PMLs des limites verticales ne sont pas montrés, bien que présents dans les simulations.

la région  $z \leq -1$  est vide<sup>1</sup> et la couche  $-1 < z < 0$  contient le *selvedge*. Dans cette dernière région, on conserve le même *filling factor* que pour les solutions analytiques du chapitre 2, soit  $f = 0.1$ . Ainsi, 10% des cellules du *selvedge* sont choisies aléatoirement pour être remplies de matériau. Le *shape factor*, pour cette géométrie, est  $s = 0.5$  alors que les solutions analytiques sont obtenues avec  $s = 0.4$ . Ces solutions dépendent que très peu de  $s$  et cette différence ne se manifeste que par une très légère différence d'amplitude des pics de la fonction d'efficacité  $\eta$ . Ce n'est pas suffisant pour changer les conclusions du chapitre 2.

Finalement, des PMLs de 20 cellules d'épaisseur sont positionnés à chaque frontière spatiale du domaine de simulation, augmentant la grille de calcul à [640 , 640 , 160] en nombre de cellules.

**Source et traitement des données** Une onde plane est propagée à l'aide d'un terme de source de fréquence unitaire.<sup>2</sup> La source est placée dans le plan  $(x,y)$  à  $z = -Z/2$ , juste à la limite entre les PMLs et la zone vide au-dessus du matériau. Cela résulte en une onde plane se

1. À noter qu'une optimisation de la quantité de mémoire peut être faite ici, car la zone de vide au-dessus du matériau ne nécessite pas d'être aussi grande. Quelques cellules d'épaisseur auraient suffi.

2. Avec une fréquence de 1 et la vitesse de propagation  $c = 1$ , la longueur d'onde vaut aussi 1, la fréquence angulaire  $\omega = 2\pi$  et le temps d'un cycle optique est 1.

propageant vers le matériau, dans la direction des  $z$  positifs. L'onde ne peut se propager dans la direction  $-z$ , car elle se frappe immédiatement à des PMLs qui l'absorbent rapidement.

La dépendance temporelle du terme de source a la forme d'une exponentielle complexe  $e^{i\omega t}$  avec une enveloppe quasi continue. Une rampe exponentielle rapide est utilisée au début de la simulation afin *d'allumer* la source moins abruptement.

L'onde plane prend trois cycles optiques à atteindre la surface du matériau, mais on attend deux autres cycles optiques avant de commencer la récolte de données afin d'avoir des solutions stables d'un cycle au suivant. On prend ensuite la moyenne temporelle du champ électrique au carré sur le reste de la simulation à la profondeur désirée, en prenant soin de retarder le début de la prise de données si la profondeur est très grande, le temps que l'onde atteigne la région sondée. Mais cela ne sera pas nécessaire pour les résultats montrés dans cette section, qui seront pour la plupart à  $z = +\delta$ , une cellule sous le *selvedge*. Ainsi, l'expression du champ moyen est

$$\langle |\vec{E}|^2 \rangle_{x,y} = \frac{2}{T_S} \int_{T_S/2}^{T_S} |\vec{E}(x,y,z = +\delta; t)|^2 dt. \quad (3.27)$$

L'intégration est faite entre  $T_S/2$  et  $T_S$ , car on utilise les 5 derniers cycles optiques sur 10, la moitié.

Les propriétés optiques du matériau sont déterminées de la même façon qu'au chapitre 2, avec le modèle de Drude et ses deux paramètres  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega)$ . Les solutions ont été calculées dans la région paramétrique suivante :  $\omega_p/\omega \in [0,10]$  et  $\gamma/\omega \in [0,4]$ .

Une transformée de Fourier 2D est appliquée afin de cerner les périodes et orientations dans les variations du champ. Chaque simulation est effectuée 50 fois avec, chaque fois, une rugosité redistribuée aléatoirement. Les 50 transformées de Fourier pour une même paire de paramètres sont ensuite moyennées dans le seul but de lisser les résultats.

Ces résultats sont analogues aux fonctions d'efficacité  $\eta$  du chapitre 2. Il n'y a qu'une relation de proportionnalité entre l'intensité et la fonction d'efficacité dans l'espace de Fourier et que l'amplitude absolue n'a aucun impact. Ce qui nous intéresse, c'est de savoir à quelles fréquences l'onde incidente est distribuée dans le plan  $(x,y)$  par rapport aux autres. C'est pourquoi ces résultats seront également nommés fonctions d'efficacité, ou fonctions  $\eta$ -FDTD plus particulièrement.

### 3.2.2 Fonctions d'efficacité

Deux régimes qualitativement distincts sont identifiables dans les résultats. Tous les résultats de la région  $\gamma/\omega > 1/4$  sont qualitativement semblables, de même que tous les résultats de la région  $\gamma/\omega < 1/4$  qui sont semblables entre eux. C'est pourquoi seules deux séries de résultats sont montrées, car elles suffisent à bien représenter tout l'espace de paramètres sondé. Une

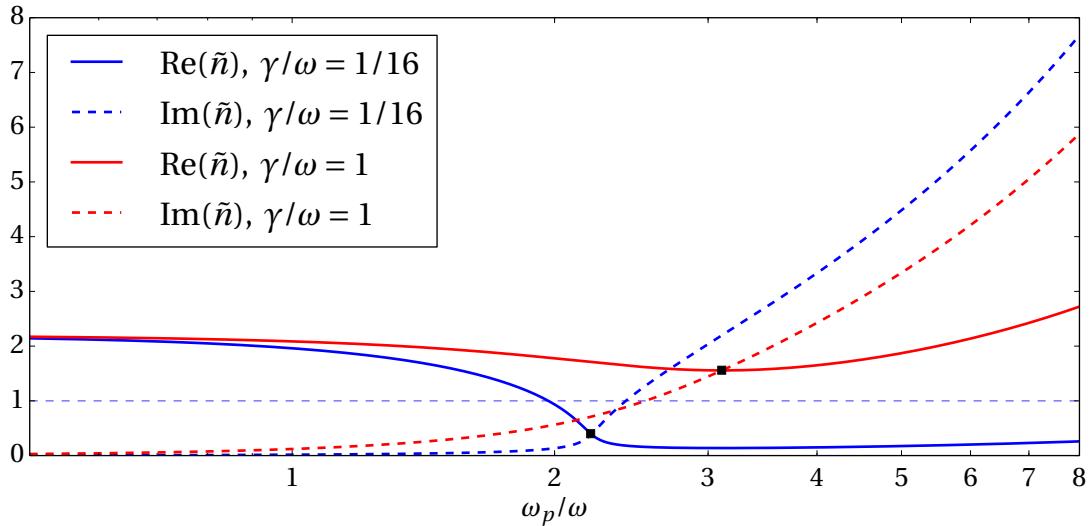


FIGURE 3.4: Parties réelles et imaginaires des indices de réfraction calculés avec le modèle de Drude avec les paramètres  $\epsilon = 4.84$  et  $\gamma/\omega = 1/16$  en bleu et  $\gamma/\omega = 1$  en rouge. Les points d'intersection sont indiqués par des points noirs à  $(\omega_p/\omega)_c = 2.2$  pour les courbes bleues et  $(\omega_p/\omega)_c = 3.11$  pour les courbes rouges.

première série à haute fréquence de collision  $\gamma/\omega = 1$ , puis une seconde à faible fréquence de collision  $\gamma/\omega = 1/16$ . Les valeurs des indices de réfraction utilisées sont montrées à la figure 3.4.

**Haute fréquence de collision.** La première série de résultats, les figures 3.5(a)-(f), est obtenue avec  $\gamma/\omega = 1$  et les valeurs indiquées de  $\omega_p/\omega$  allant de 0 à 8.4. Les parties réelles et imaginaires des indices de réfraction correspondant suivent les courbes rouges de la figure 3.4.

Quand la densité de plasma est faible, une paire de pics dominants apparaît près de  $k_y \sim \text{Re}(\tilde{n})$ , correspondant à des structures de type-d, parallèles au sens de polarisation et de période  $\Lambda \sim \lambda/\text{Re}(\tilde{n})$ . À très grande densité de plasma, la paire de pics dominants est près de  $k_x \sim 1$ , correspondant à des structures de type-s, perpendiculaires au sens de polarisation et de période  $\Lambda \sim \lambda$ .

La transition entre ces deux comportements, type-d vers type-s, se situe autour de  $(\omega_p/\omega)_c$ , défini comme le point de croisement entre les parties réelle et imaginaire de  $\tilde{n}$  (où, de façon équivalente, quand  $\text{Re}(\tilde{\epsilon}) = 0$ ). Dans le cas présent,  $(\omega_p/\omega)_c = 3.11$ , près de la valeur de la figure 3.5(c), où les deux paires de pics ont une amplitude semblable. Pour mieux s'en convaincre, les coupes de long des axes  $k_x = 0$  et  $k_y = 0$  sont montrées à la figure 3.6 pour des valeurs de  $\omega_p/\omega$  sous-critique (a), critique (b) et sur-critique (c). C'est en effet à la valeur critique que les deux amplitudes sont les plus proches et presque égales.

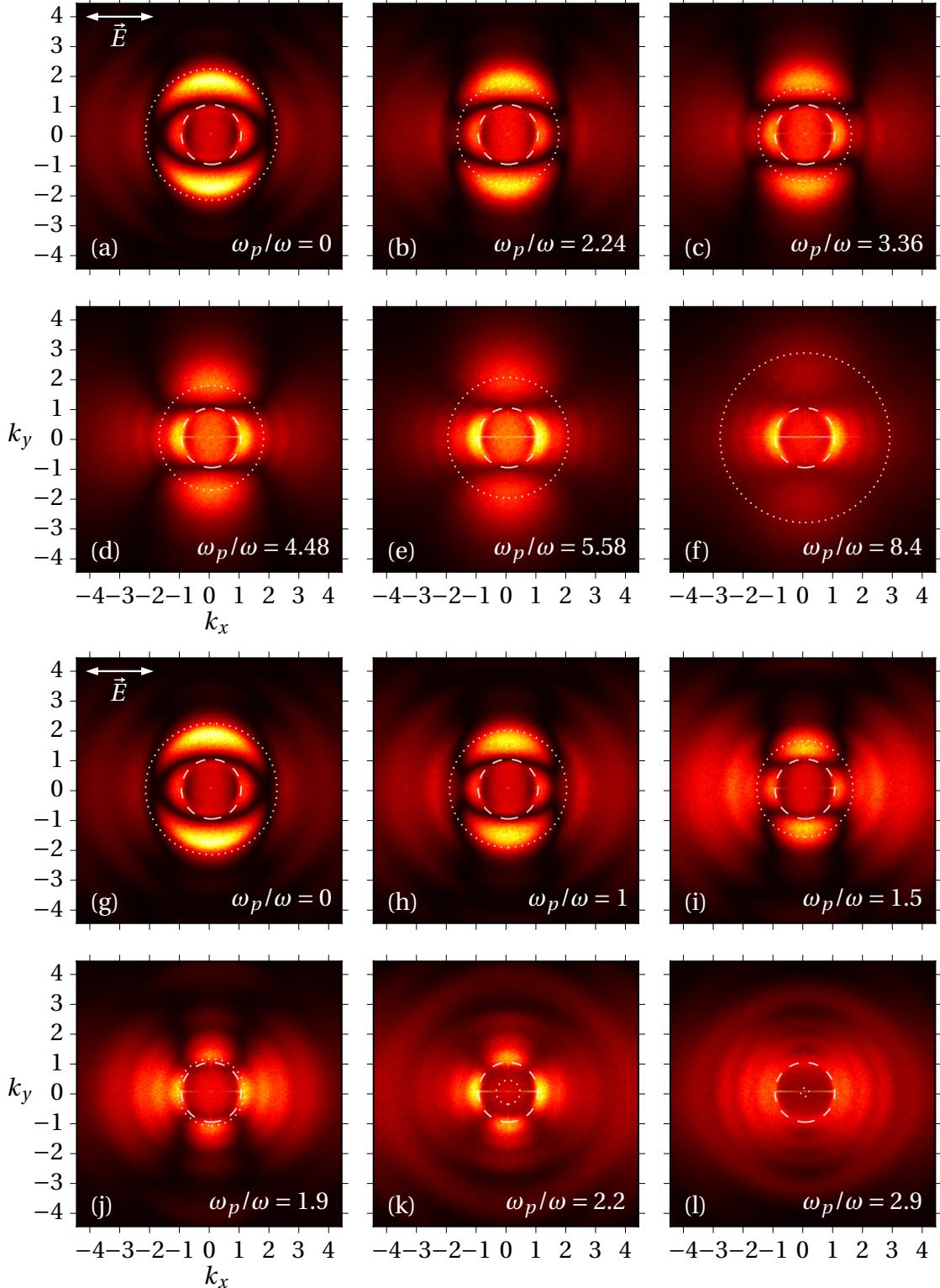


FIGURE 3.5: Fonctions  $\eta$ -FDTD moyennées sur 50 simulations. Les figures (a) à (f) utilisent  $\gamma/\omega = 1$  et les figures (g) à (l) utilisent  $\gamma/\omega = 1/16$ . Les valeurs de  $\omega_p/\omega$  sont indiquées sur chaque figure et le sens de polarisation est montré en (a). Le cercle pointillé indique là où  $|\vec{k}| = \text{Re}(\tilde{n})$  et l'autre cercle là où  $|\vec{k}| = 1$ .

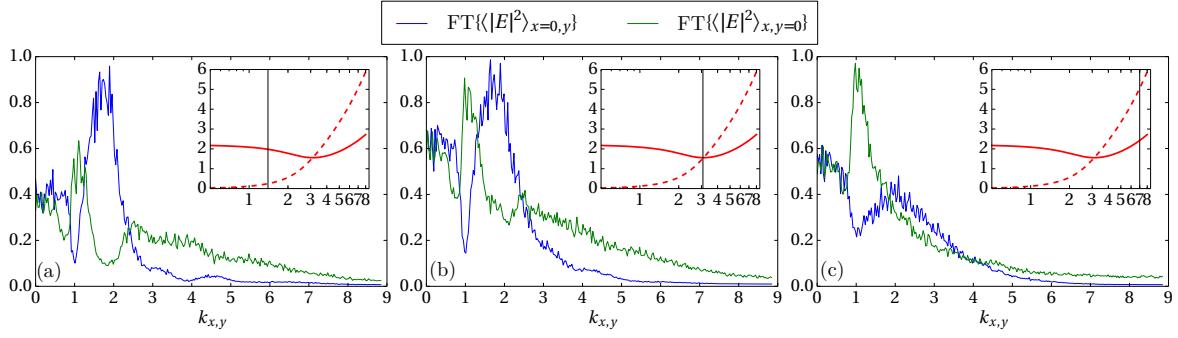


FIGURE 3.6: Sections à  $k_x > 0$  et  $k_y = 0$  en vert et  $k_y > 0$  et  $k_x = 0$  en bleu. La fréquence de collision est à  $\gamma/\omega = 1$  et la fréquence de plasma  $\omega_p/\omega$  est sous critique en (a), critique en (b) et sur-critique en (c). Les figures insérées montrent les courbes du modèle de Drude et la ligne verticale, là où les valeurs de l'indice de réfraction ont été prises. Le pic de la courbe bleue est un comportement de type-d et le pic de la courbe verte est un comportement de type-s.

**Faible fréquence de collision.** La seconde série de résultats, les figures 3.5(g)-(l), est obtenue avec  $\gamma/\omega = 1/16$  et les valeurs indiquées de  $\omega_p/\omega$  allant de 0 à 2.9. Les courbes bleues de la figure 3.4 montrent les parties réelle et imaginaire de  $\tilde{n}$  correspondantes.

À faible densité de plasma, le comportement de type-d est toujours dominant, c'est en s'approchant de  $(\omega_p/\omega)_c = 2.2$  que ça change. D'abord, la fréquence des structures de type-d dérive vers des plus basses valeurs, de  $k_y \sim \text{Re}(\tilde{n})$  vers  $k_y \sim 1$ , d'un comportement de type-d à type-m. Ce résultat s'explique avec la diminution plus rapide de  $\text{Re}(\tilde{n})$  par rapport au cas précédent. Puis, près de  $(\omega_p/\omega)_c = 2.2$ , les pics correspondant au comportement de type-s apparaît avec une amplitude très proche de ceux de type-m. Le nom de structure croisée est donné dans le cas précis de la superposition des structures de type-m et type-s.

La dérive des structures de type-d vers celles de type-m et l'apparition de celles de type-s est plus facilement appréciable avec les sections à  $k_x = 0$  et  $k_y = 0$  de la figure 3.7. Cette fois, le cas sous-critique (a) montre des structures de type-d, le cas critique (b) montre la présence simultanée et d'amplitude similaire des structures de type-m et type-s. Puis, le cas sur-critique (c) montre que les structures de type-m sont atténuées par rapport à celles de type-s qui prennent graduellement le dessus.

Ces résultats sont très fidèles au scénario décrit dans l'introduction et montré à la figure 0.1. À faible fluence, des structures parallèles de type-d sont formées et à plus grande fluence, les structures parallèles ont une période beaucoup plus grande ( $\Lambda \sim \lambda$ , type-m) et la distribution orthogonale de *nanovoids* a la même signature fréquentielle que le comportement de type-s.

**Comportement de type-r.** Au chapitre 2, les solutions analytiques de Sipe montraient des maxima importants et divergents aux grandes fréquences de l'axe  $\kappa_x$ . Il est possible que ceux-ci soient reliés à la formation de structures de type-r, mais le domaine de validité de ces

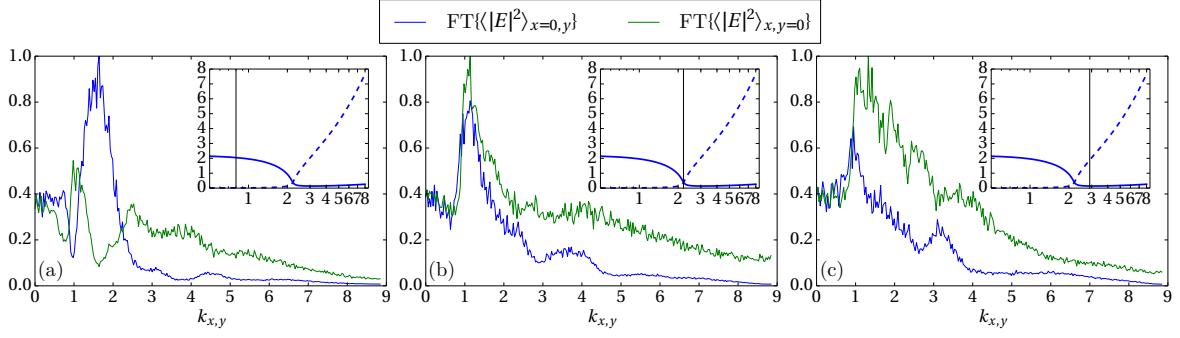


FIGURE 3.7: Sections à  $k_x > 0$  et  $k_y = 0$  en vert et  $k_y > 0$  et  $k_x = 0$  en bleu. La fréquence de collision est à  $\gamma/\omega = 1/16$  et la fréquence de plasma  $\omega_p/\omega$  est sous critique en (a), critique en (b) et sur-critique en (c). Les figures insérées montrent les courbes du modèle de Drude et la ligne verticale, là où les valeurs de l'indice de réfraction ont été prises. Le pic de la courbe bleue montre un comportement de type-d devenir graduellement un comportement de type-m. Le pic de la courbe verte est un comportement de type-s.

solutions est restreint aux faibles fréquences et il est difficile d'en tirer des conclusions.

Avec la présente méthode numérique, le domaine de validité peut être étendu en augmentant la précision du calcul. À  $\delta = \lambda/20$ , seules les oscillations d'une fréquence plus petite ou égale à 2 respectent la condition généralement acceptée de 10 points par période afin d'être suffisamment définies. Les solutions à  $\lambda/40$  montrent toutefois des solutions pratiquement identiques aux grandes fréquences (pas montrées). Ces résultats sont amplement discutés par Skolski *et. al* dans [22, 53, 54], où il conclue que ces maxima peuvent expliquer la formation des structures de type-r quand la profondeur d'ablation est très faible. Cette profondeur doit être faible, car ces maxima ont une très forte dépendance en  $z$  et décroient très rapidement. Cet aspect sera discuté à nouveau au prochain chapitre.

### 3.3 Effet collectif d'inhomogénéités uniques

Dans la dernière section, on a vu comment une onde plane était affectée en traversant une surface rugueuse constituée d'un très grand nombre d'inhomogénéités de surface. Cette section a pour but d'observer l'effet qu'a une inhomogénéité unique sur l'onde plane d'une façon analogue à la réalisation expérimentale qui a permis d'identifier clairement l'importance des *surface plasmon polaritons* (SPPs) [16, 55] et des *radiation remnants* (RRs) [56, 57] lors des premiers instants de la formation des LIPSSs.

Une méthode alternative de calcul des fonctions d'efficacité est également proposée, plus simple et potentiellement plus précise. Mais ses preuves restent à faire.

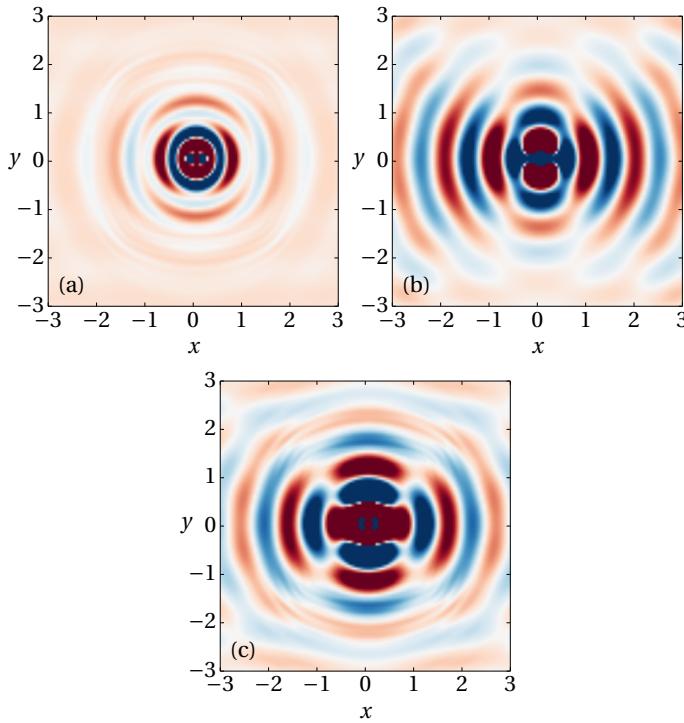


FIGURE 3.8: Intensité moyenne du champ à  $z = +\delta$  avec une seule inhomogénéité de surface positionnée au centre de la surface. Les paramètres sont  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega) = (0,1)$  (a),  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega) = (8.4,1)$  (b),  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega) = (1.9,1/16)$  (c). Le sens de polarisation est le long de l'axe  $x$ .

### 3.3.1 Excitations de surface

Les simulations sont très semblables aux précédentes, excepté que le domaine est réduit à  $[X_S, Y_S, Z_S] = [14\lambda, 14\lambda, 6\lambda]$  et qu'une seule inhomogénéité est placée au centre du plan  $(x,y)$  sur la surface. Les résultats sont cette fois montrés dans le domaine spatial. Les trois paires  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega)$  qui nous intéressent sont celles qui devraient mener aux structures de type-d, type-s et les croisées. Ce sont les trois cas qui sont montrés à la figure 3.8.

Le premier cas,  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega) = (0,1)$ , est celui d'un matériau parfaitement transparent qui devrait présenter un comportement de type-d, montré à la figure 3.8(a). Il est difficile de tirer des conclusions de cette figure seule et sert principalement de comparaison avec les deux autres cas, beaucoup plus parlants.

La figure 3.8(b) utilise la paire  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega) = (8.4,1)$ , la même qu'à la figure 3.5(f) où le comportement de type-s domine. Cette fois, on observe des oscillations très claires le long de l'axe  $x$  à une fréquence près de 1, d'une façon similaire aux structures de type-s. Un équivalent expérimental est possible en déposant des nanoparticules isolées sur une surface parfaitement lissée [19]. Après une irradiation laser près du seuil d'ablation, la surface prend une forme très semblable à ce qui calculé à la figure 3.8(b).

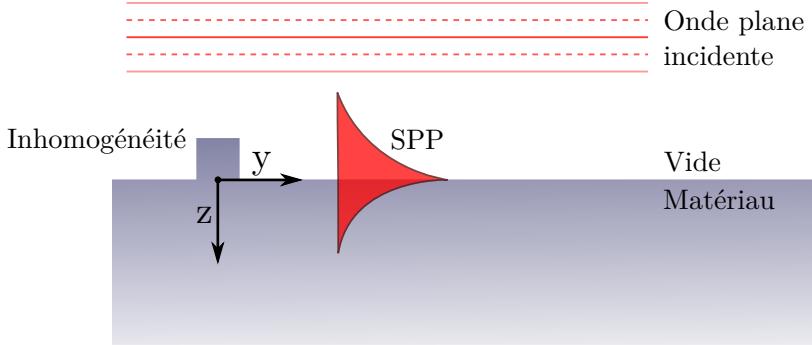


FIGURE 3.9: Production de SPPs autour d'une inhomogénéité de surface. Une partie de l'énergie de l'onde plane incidente est piégée à l'interface entre le matériau et le vide (ou n'importe quel matériau qui remplit les conditions d'accord de phase) et se propage le long de cette surface.

Puis, la figure 3.8(c) utilise la même paire de paramètres que la figure 3.5(j),  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega) = (1.9, 1/16)$  avec laquelle des structures croisées sont attendues. On retrouve toujours des oscillations de fréquence 1 le long de l'axe  $x$ , mais cette fois, des oscillations de même fréquence et d'amplitude très semblables sont présentes le long de l'axe  $y$  également.

**Solutions de l'équation d'Helmholtz.** Ces excitations de surface peuvent s'écrire sous la forme de solutions de l'équation d'Helmholtz  $(\vec{\nabla}^2 + \vec{k}^2)\vec{E} = 0$ . Le cas des oscillations le long de l'axe  $y$  est [58]

$$\vec{E}(y,z,t) = \begin{cases} \hat{x}E_1 \exp(ik_{y1}y + \alpha_1 z - i\omega t), & z < 0, \\ \hat{x}E_2 \exp(ik_{y2}y - \alpha_2 z - i\omega t), & z > 0, \end{cases} \quad (3.28)$$

dans le plan  $(y,z)$  représenté à la figure 3.9. Les valeurs aux indices 1 ou 2 correspondent au milieu dans lequel ils sont définis, 1 étant le vide à  $z < 0$  et 2 étant un matériau de permittivité  $\tilde{\epsilon}$  à  $z > 0$ . En utilisant l'équation (3.8), on trouve le champ magnétique correspondant

$$\vec{H}(y,z,t) = \begin{cases} -\left[\hat{y}\frac{E_1\alpha_1}{i\omega\mu_1} + \hat{z}\frac{E_1k_{y1}}{\omega\mu_1}\right] \exp(ik_{y1}y + \alpha_1 z - i\omega t), & z < 0, \\ \left[\hat{y}\frac{E_2\alpha_2}{i\omega\mu_2} - \hat{z}\frac{E_2k_{y2}}{\omega\mu_2}\right] \exp(ik_{y2}y - \alpha_2 z - i\omega t), & z > 0. \end{cases} \quad (3.29)$$

En égalant les champs tangentiels, on trouve la condition d'accord de phase (*phase matching*)

$$\frac{\alpha_1}{\mu_1} + \frac{\alpha_2}{\mu_2} = 0. \quad (3.30)$$

De la même façon, on trouve la condition d'accord de phase pour les oscillations le long de l'axe  $x$  dans le plan  $(x,z)$ ,

$$\frac{\alpha_1}{\epsilon_1} + \frac{\alpha_2}{\epsilon_2} = 0. \quad (3.31)$$

Avec les permittivités du milieu 1,  $\epsilon_1$  et du milieu 2,  $\epsilon_2$ . Puisque  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$  sont nécessairement réels et positifs, les conditions d'accord de phase ne peuvent être respectées que si  $\mu_1$  et  $\mu_2$  ne

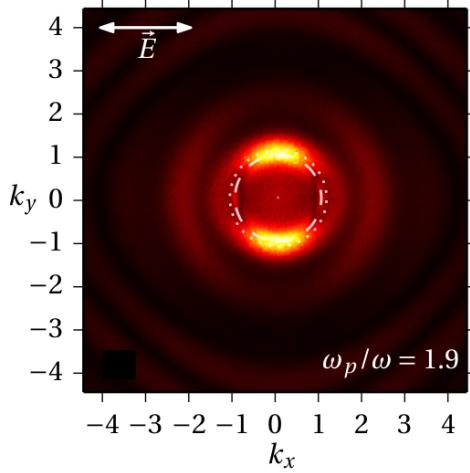


FIGURE 3.10: Fonction d’efficacité  $\eta$ -FDTD obtenue à  $z = 5\delta$  et les mêmes paramètres qu’à la figure 3.5(j), soient  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega) = (1.9, 1/16)$ . Ces maxima correspondent à des structures de type-m. Les maxima des structures de type-s sont présents à  $z < 4\delta$ .

sont pas du même signe dans le premier cas d’oscillations le long de l’axe  $y$  ou si  $\epsilon_1$  et  $\epsilon_2$  ne sont pas du même signe dans le cas des oscillations le long de l’axe  $x$ .

Or, la permittivité change de signe quand  $\text{Re}(\tilde{n}) = \text{Im}(\tilde{n})$ , mais la perméabilité est toujours constante dans les simulations. Donc seules les oscillations le long de l’axe  $x$  (figure 3.8(b)) peuvent être causées par des SPPs. Celles de l’axe  $y$  (figure 3.8(c)) ne peuvent être confinées à l’interface. Cela peut être vérifié en regardant la forme du champ plus profondément sous la surface. La même simulation qui a donné la figure 3.5(j), avec une rugosité complète et  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega) = (1.9, 1/16)$ , mais à  $z = 5\delta$  est alors effectuée. On obtient la figure 3.12, où les pics correspondant aux structures de type-s (oscillations le long de l’axe  $x$ ) sont fortement atténués par rapport aux pics des structures de type-m (oscillations le long de l’axe  $y$ ).

Une meilleure description pour les oscillations le long de l’axe  $y$  est donnée par les *radiation remnants* (RRs). Ces excitations ont un comportement semblable aux SPPs, mais elles sont non radiatives (ne transportent pas d’énergie et donc, respectent les équations de Maxwell). Une description mathématique complète est disponible dans [57].

### 3.3.2 Méthode alternative de calcul des fonctions d’efficacité

Pour l’instant, deux méthodes ont été utilisées afin d’obtenir les fonctions d’efficacité  $\eta$ . Une première, analytique, permet d’obtenir rapidement et facilement les solutions, mais sous plusieurs approximations et restrictions indésirables. La seconde, simuler le phénomène entier avec un schéma FDTD et une surface rugueuse. Cette seconde méthode s’affranchit des approximations de la méthode analytique, mais est lourde numériquement et les solutions sont très bruitées, nécessitant de moyenner sur un grand nombre de simulation afin de les lisser en

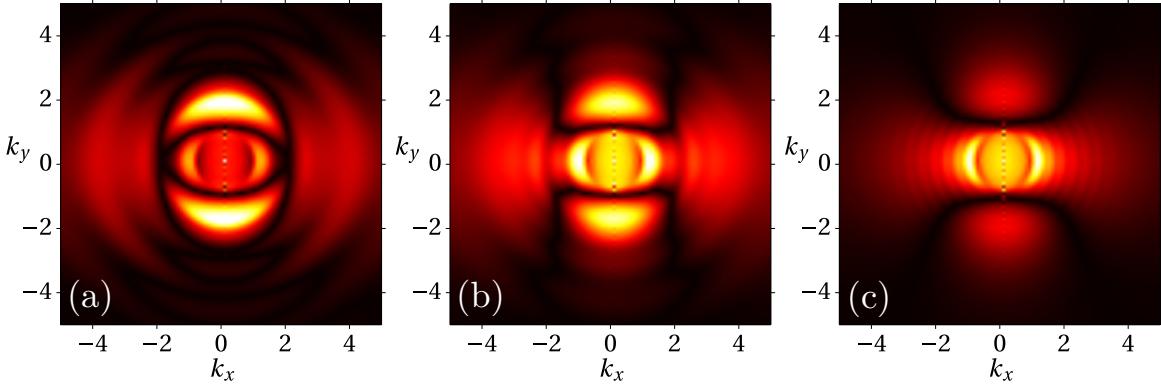


FIGURE 3.11: Fonctions d’efficacité obtenues avec la transformée de Fourier du champ sous la surface ( $z = \delta$ ) avec une seule inhomogénéité. Les paramètres sont  $\gamma/\omega = 1$  et  $\omega_p/\omega = 0$  (a), 3.36 (b) et 5.58 (c), les mêmes paramètres qu’aux figures 3.5 (a), (c) et (e).

partie.

Or, on vient de voir que l’utilisation d’une seule inhomogénéité de surface dans un domaine de simulation restreint permet d’observer des comportements analogues aux cas utilisant une rugosité complète. C’est pourquoi il devient tentant de faire une transformée de Fourier 2D sur ces résultats à une inhomogénéité afin de comparer les résultats. Les résultats sont montrés à la figure 3.11 pour  $\gamma/\omega = 1$  et  $\omega_p/\omega = 0$  (a), 3.36 (b) et 5.58 (c). Ce sont les paramètres correspondant aux figures 3.5(a), (c) et (e) respectivement.

Les deux méthodes offrent des résultats très semblables. Cela signifie que presque toute la physique peut être retrouvée avec une seule inhomogénéité et que les interactions entre les SPPs ou RR de différentes sources ne sont pas si importantes pour les fonctions  $\eta$ . On note également que ces fonctions d’efficacité sont lisses et que celles obtenues précédemment étaient très bruitées, malgré le moyennage sur 50 simulations. Le temps de calcul est également beaucoup plus petit (entre deux et trois ordres de grandeur de moins). La différence principale est dans la région de faibles fréquences  $|\vec{k}| < 1$  où les valeurs de  $\eta$  sont beaucoup plus grandes.

Finalement, la dépendance en profondeur de cette méthode semble également être similaire. Avec la même paire de paramètres qu’à la figure 3.12, soit  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega) = (1.9, 1/16)$  et toujours à  $z = 5\delta$ , on retrouve le même comportement de type-m. Les anneaux à hautes fréquences sont toutefois plus prononcés.

On ne peut pas tirer de conclusion de ces deux différences, à  $|\vec{k}| < 1$  et les anneaux de hautes fréquences. Cette méthode alternative promet, mais manque toujours d’investigation.

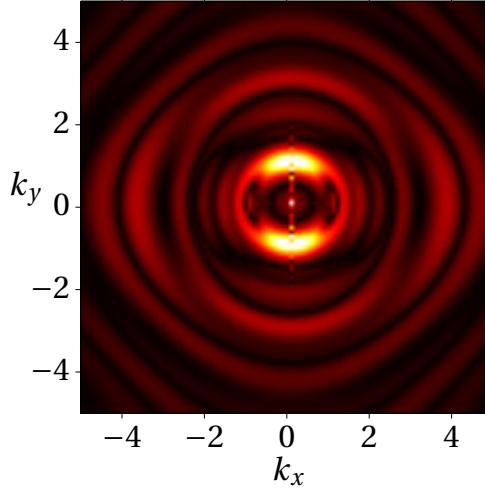


FIGURE 3.12: Fonction d'efficacité à  $z = 5\delta$  et  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega) = (1.9, 1/16)$ , comme à la figure 3.12, mais obtenue avec seulement une inhomogénéité.

### 3.3.3 Entre inhomogénéité unique et rugosité

Un autre exercice intéressant peut facilement être fait, soit l'intermédiaire entre les simulations à une seule inhomogénéité et une rugosité complète, comme au début du chapitre. On peut faire cela en partant d'un petit nombre d'inhomogénéités, qu'on augmente graduellement jusqu'à ce qu'on retrouve un *filling factor* de  $f = 10\%$ .

D'abord, le cas d'un matériau transparent  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega) = (0, 1)$  pour  $f$  variant entre 0.01% et 10% permet d'obtenir la figure 3.13. Puis, pour un matériau très absorbant,  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega) = (8.4, 1)$ , on obtient la figure 3.14.

Si le cas du matériau transparent permet de discerner assez bien les structures de type-d, ce n'est pas du tout le cas du matériau au comportement métallique. La figure 3.14(i) est très révélatrice malgré tout. Il s'agit d'exactement les mêmes paramètres qui ont mené à la figure 3.5(f), mais dans le domaine spatial. Pourtant, dans le domaine des fréquences, une paire de pics très nets correspondant au comportement de type-s est présente. Cela signifie que le comportement est bien là, globalement, mais que cette seule interaction avec une surface rugueuse n'est pas suffisante pour expliquer ces structures localement. C'est pourquoi, dans le chapitre 4, on ajoutera une forme de rétroaction entre le champ et la forme de la surface pouvant permettre aux structures de s'auto-organiser.

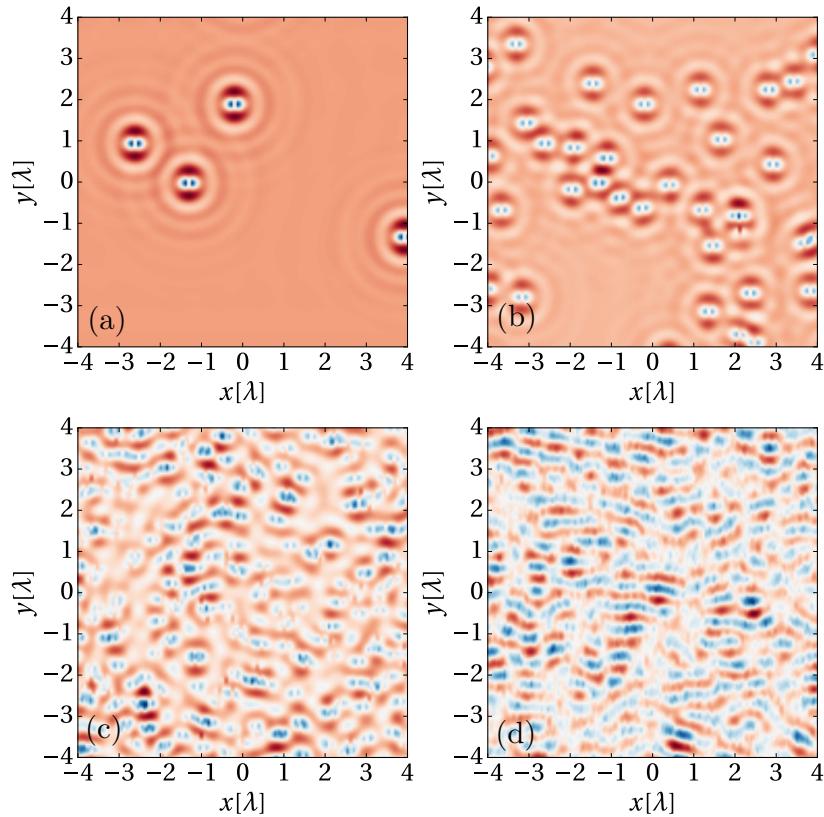


FIGURE 3.13: Intensité moyenne sous la surface ( $z = +\delta$ ) pour un *filling factor* de  $f = 0.01\%$  (a),  $0.1\%$  (b),  $1\%$  (c) et  $10\%$  (d). Le sens de polarisation est le long de l'axe  $x$ . Les paramètres sont  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega) = (0,1)$ .

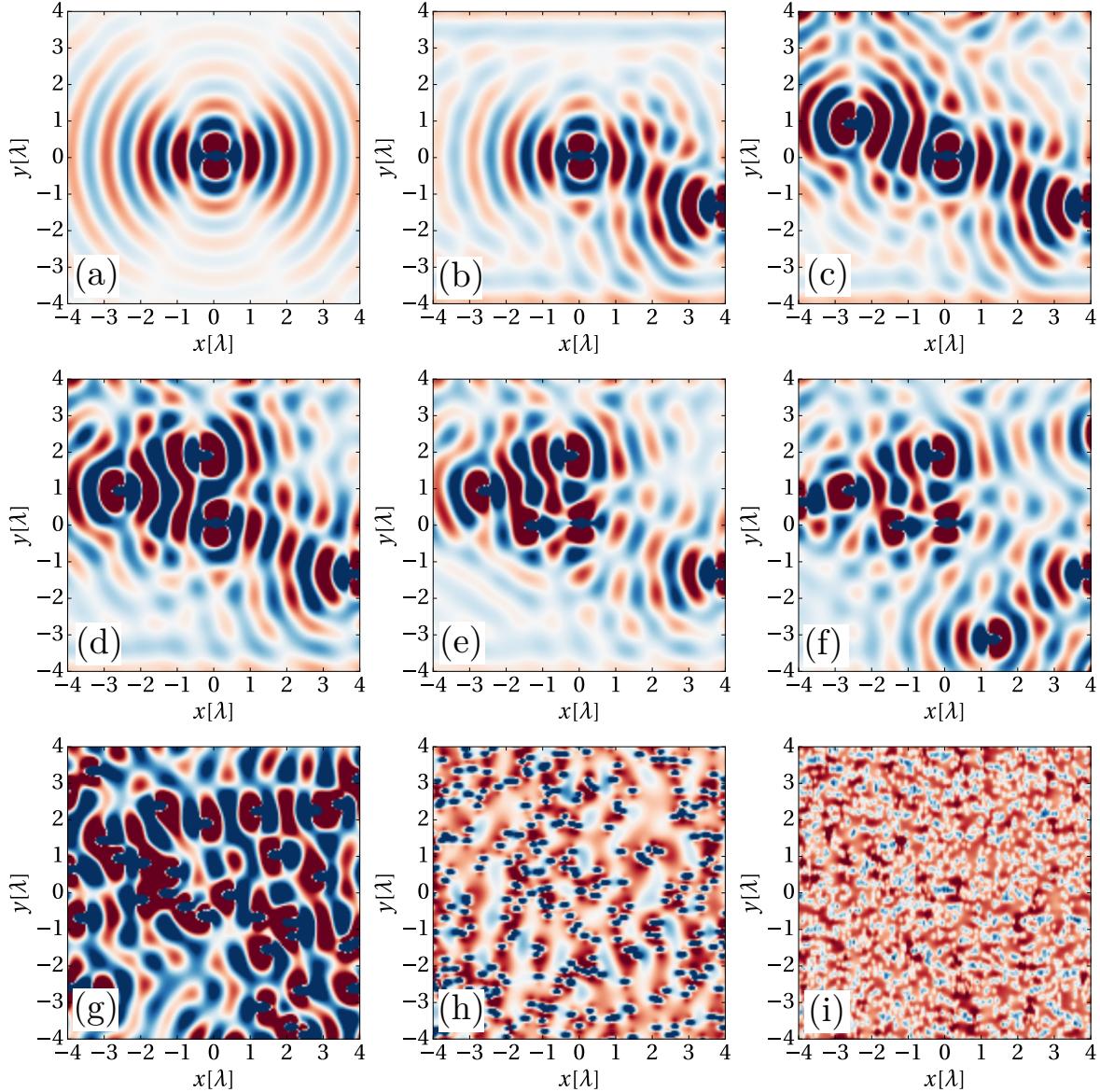


FIGURE 3.14: Intensité moyenne sous la surface ( $z = +\delta$ ) pour 1 (a), 2 (b), 3 (c), 4 (d), 5 (e), 7 (f) inhomogénéités, puis un *filling factor* de  $f = 0.1\%$  (g),  $1\%$  (h) et  $10\%$  (i). Le sens de polarisation est le long de l'axe  $x$ . Les paramètres sont  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega) = (8.4, 1)$ .

## Chapitre 4

# Croissance des réseaux de surface

Le chapitre précédent s'est arrêté avec la forme obtenue par une onde plane incidente après sa propagation au travers de la surface rugueuse d'un matériau aux propriétés optiques métalliques,  $\text{Re}(\tilde{n}) < \text{Im}(\tilde{n})$ . On a montré que, dans le domaine spatial, aucune structure n'est clairement discernable, une contradiction majeure avec les expériences qui montrent des structures très bien définies et régulières. Pourtant, les solutions dans le domaine des fréquences montrent bien des fréquences préférentielles dans le profil d'énergie lumineuse. On dit alors que le comportement menant à la formation des réseaux de surface est présent globalement, mais pas localement. Afin d'obtenir des solutions bien définies localement, un élément très important du phénomène manque au modèle, l'auto-organisation. Il s'agit de permettre à une faible organisation initiale de se renforcer d'elle-même avec un mécanisme de rétroaction.

Ce chapitre contient l'essentiel d'un recent compte-rendu intitulé *Constructive feedback for the growth of laser-induced periodic surface structures* soumis récemment à *Physica Status Solidi C*.

### 4.1 Auto-organisation

Afin de permettre l'auto-organisation, il est primordial d'intégrer un mécanisme de rétroaction. C'est ainsi que la faible organisation initiale du champ peut avoir un effet sur elle-même et se renforcer. Deux façons d'intégrer la rétroaction sont envisageables, soient la rétroaction intra-impulsion ou inter-impulsion.

**Rétroaction intra-impulsion.** Le cas intra-impulsion est parfois cité dans la littérature comme l'inclusion du modèle de Drude dans les calculs afin de tenir compte des changements de propriétés optiques du matériau *durant* son irradiation, mais ceci est une forme de rétroaction déterminée *a posteriori* et qui ne peut permettre d'auto-organisation, puisque le terme de Drude est constant dans tout le matériau. Il serait beaucoup plus intéressant de permettre à ce terme de varier dans l'espace et le temps en fonction des mécanismes d'ionisation dans le

matériaux. Ainsi, la faible organisation initiale observée dans le profil d'intensité moyen durant les premiers cycles optiques de l'impulsion laser sera inscrite dans le profil d'ionisation. Les cycles optiques subséquents se frapperont alors à une surface avec une rugosité aléatoire, mais avec une certaine organisation dans la distribution du plasma, entraînant une déposition de mieux en mieux organisée plus on avance dans le temps durant une seule impulsion laser. C'est ce que l'on nomme l'auto-organisation par rétroaction intra-impulsion.

**Rétroaction inter-impulsion.** Le cas inter-impulsion, celui qui sera traité dans ce chapitre, utilise toujours une distribution constante du plasma, mais modifie plutôt la forme de la surface du matériau. Puisque la grande majorité des expériences sont réalisées à l'aide de trains d'impulsions, on utilise un mécanisme d'ablation pour changer la morphologie de la surface après une première impulsion laser et avant d'envoyer une seconde et ainsi de suite. Encore une fois, l'organisation de la première impulsion sera très faible, mais celle-ci se retrouvera inscrite dans la nouvelle forme de la surface. La seconde simulation utilisera cette surface et la nouvelle impulsion ne frappera pas une surface complètement aléatoire, mais légèrement organisée. On s'attend donc à ce que cette deuxième impulsion se distribue de façon un peu mieux organisée. Le processus peut être répété aussi souvent que nécessaire.

Afin d'implémenter la rétroaction inter-impulsion, il faut s'armer d'un mécanisme de modification de la forme de la surface qui dépend de la distribution spatiale du champ. À ce point, le problème peut se complexifier considérablement étant conscient de la panoplie de phénomènes pouvant se produire durant une telle interaction. Explosion plasmique, fonte du matériau, ébullition, photo-expansion sont quelques exemples de la complexité des phénomènes possibles et leur prise en compte globale n'est pas réaliste.

Nous utiliserons alors un processus très simplifié proposé par Skolski *et al.* [53] qui a fait ses preuves dans certains cas, mais une extension est proposée permettant de reproduire un plus grand nombre de résultats expérimentaux. Il s'agit d'une forme d'ablation dite non physique, puisque ce n'est qu'une façon qualitative de reproduire ce phénomène. La méthode est illustrée à la figure 4.1. Une fois la première impulsion envoyée, de la même façon qu'au chapitre 3, un seuil d'intensité  $I_{\text{seuil}}$  est déterminé et une isosurface  $s(x,y,z)$  est tracée là où le profil d'intensité calculé est égal à  $I_{\text{seuil}}$ . Tout le matériau situé au-dessus de cette isosurface a donc été exposé à une intensité moyenne plus élevée que le seuil et est remplacé par du vide avant d'envoyer une seconde impulsion. Le processus est répété  $N$  fois.

Un avantage certain de cette méthode est qu'un seul nouveau paramètre est ajouté. Le paramètre en question n'est pas directement  $I_{\text{seuil}}$ , mais plutôt le critère utilisé afin de déterminer ce seuil. Le nouveau paramètre est la profondeur d'ablation moyenne de la première impulsion  $\Delta s$ , toujours en unités de  $\lambda$ . Par exemple, si l'on souhaite retirer 100 nm de matériau avec un laser de  $\lambda = 800$  nm, on a  $\Delta s = 1/8$  et on détermine de façon itérative (bisection) la valeur de  $I_{\text{seuil}}$  permettant d'atteindre la profondeur d'ablation désirée. La même valeur de seuil est

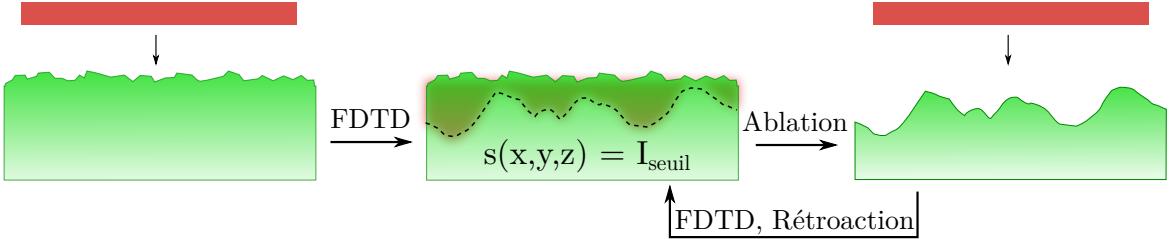


FIGURE 4.1: Représentation d'un cycle de la méthode de rétroaction inter-impulsion par ablation. Une première impulsion traverse la surface rugueuse aléatoire, l'isosurface  $s$  est tracée le long de la valeur d'intensité seuil  $I_{\text{seuil}}$  et tout le matériau au-dessus cette isosurface est retiré avec d'envoyer une nouvelle impulsion.

utilisée pour les impulsions suivantes.

## 4.2 Croissance inter-impulsion

### 4.2.1 Régime d'ablation

**Type-s.** Toujours avec la méthode FDTD expliquée au chapitre 3 et une géométrie initiale semblable, mais dans un domaine réduit de  $[X_S, Y_S, Z_S] = [10\lambda, 10\lambda, 2\lambda]$  (excluant toujours les PMLs de  $1\lambda$  de large sur chaque frontière), on commence par les paramètres  $\omega_p/\omega = 8.4$  et  $\gamma/\omega = 1$  utilisés à la fin du chapitre précédent qui ont mené à la figure 3.14(i). On choisit également  $\Delta s = 0.11$ , ce qui correspond à retirer une moyenne de 2.2 cellules de matériau entre les deux premières impulsions laser avec la discrétisation de  $\delta = \lambda/20$ . Si le laser a une longueur d'onde de 800 nm, cela correspond à une profondeur d'ablation de 88 nm. La figure 4.2 est alors obtenu pour 9 cycles de rétroaction inter-impulsion.

Tel que prédit par les fonctions d'efficacité  $\eta$  obtenues avec les trois méthodes utilisées aux chapitres 2 et 3, des structures de type-s apparaissent. Leur forme commence à se préciser après 3 impulsions et les suivantes entraînent surtout une croissance de leur amplitude. Les transformées de Fourier de ces surfaces sont montrées à la figure 4.3.

**Type-r.** Dans le cas présent d'un matériau au comportement métallique, un autre type de structures peut être généré avec des valeurs plus faibles de  $\Delta s$ . Il a été discuté, au chapitre 3, que les maxima dans les fonctions d'efficacité correspondant aux structures de type-r (perpendiculaires au sens de polarisation et une période  $\Lambda_r \ll \lambda$ ) deviennent très vite dominants en regardant le champ moins en profondeur, près de la surface. Ainsi, en diminuant la profondeur d'ablation, on peut s'attendre à ce que les structures de type-r soient également inscrites dans la nouvelle forme de la surface.

La résolution est augmentée à  $\delta = \lambda/40$  pour ses structures en particulier, vu leur petite taille. Avec les paramètres  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega, \Delta s) = (4, 1, 0.035)$ , on obtient la figure 4.4 avec les transformées

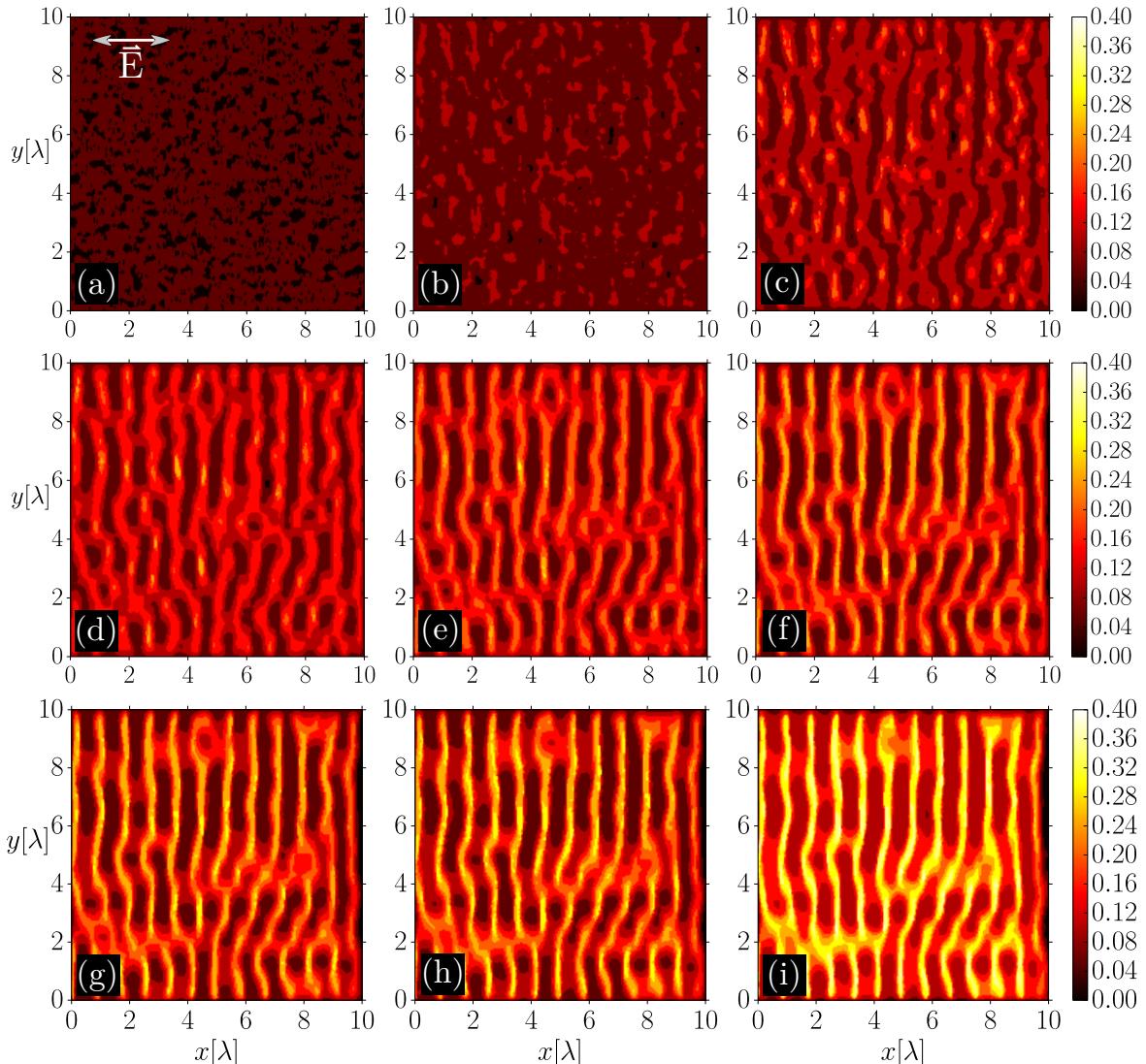


FIGURE 4.2: Croissance de structures de type-s sur 9 cycles de rétroaction inter-impulsion par ablation. Les paramètres sont  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega, \Delta s) = (8.4, 1, 0.11)$ .

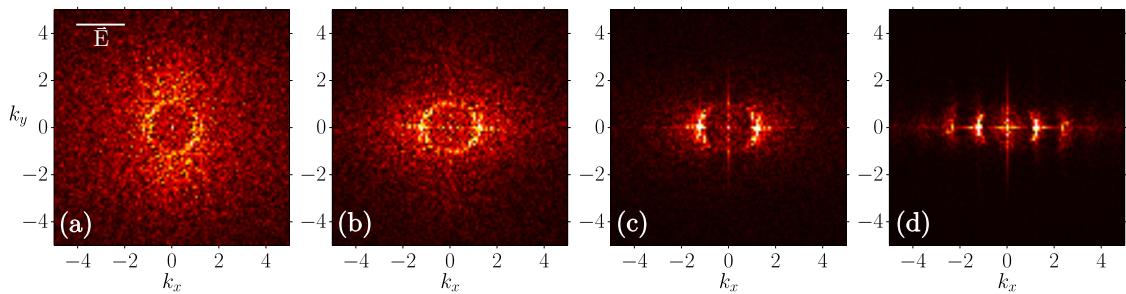


FIGURE 4.3: Transformées de Fourier des figures 4.2 (a), (b), (c) et (i). Les nombres d'impulsions sont alors  $N = 1, 2, 3$  et 9 respectivement.

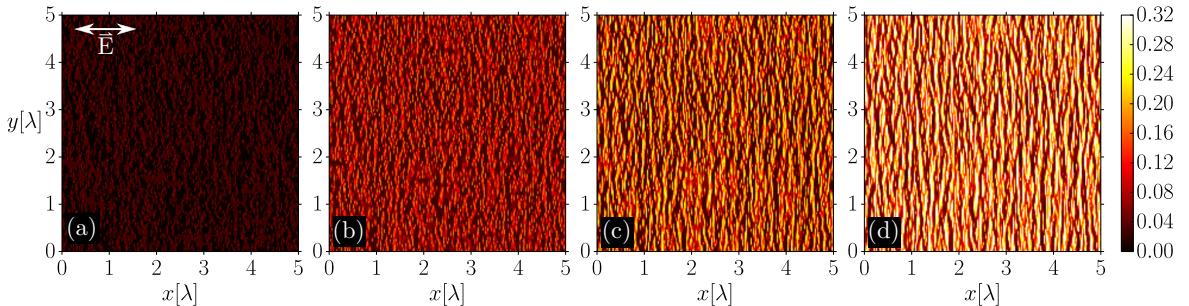


FIGURE 4.4: Croissance de structures de type-r sur 9 cycles de rétroaction inter-impulsion par ablation. Les paramètres sont  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega, \Delta s) = (4, 1, 0.035)$ . Les nombres d'impulsions sont  $N = 1, 3, 6$  et  $9$  en (a), (b), (c) et (d) respectivement.

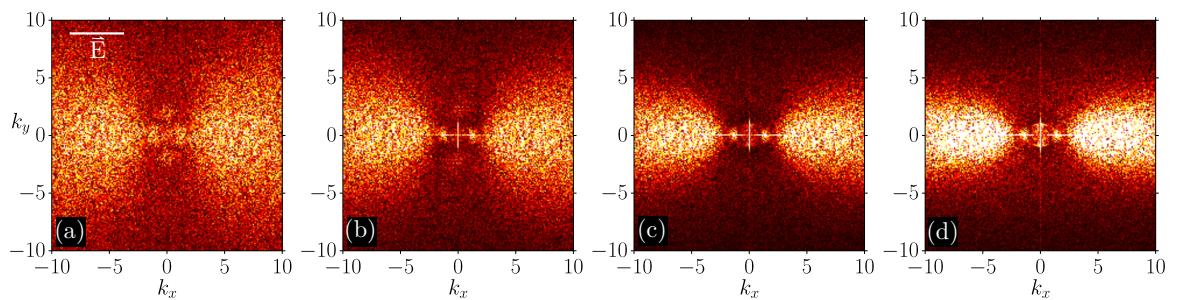


FIGURE 4.5: Transformées de Fourier des figures 4.4 (a) à (d).

de Fourier à la figure 4.5.

**Échec de la croissance des structures de type-d.** Les structures de type-d devraient apparaître pour un matériau au comportement diélectrique, soit  $\text{Re}(\tilde{n}) > \text{Im}(\tilde{n})$ . Bien que leur forme typique soit observée avec la méthode de rétroaction par ablation, des structures parallèles au sens de polarisation avec  $\Lambda_d \sim \lambda/\text{Re}(\tilde{n})$ , aucune croissance n'est possible. Entre chaque cycle de simulation, les maxima et les minima de la surface s'interchangent et l'amplitude des structures, bien qu'elle augmente légèrement durant les quelques premiers cycles, tend plutôt à diminuer avec les impulsions suivantes. Ceci est montré avec les paramètres  $\omega_p/\omega = 2$ ,  $\gamma/\omega = 1$  et  $\Delta s = 0.11$  et on obtient ainsi la figure 4.6 pour 6 cycles de rétroaction par ablation.

#### 4.2.2 Rétroaction constructive et destructive

Avec le mécanisme d'ablation introduit à la section précédente, on peut observer la croissance de structures dans des matériaux au comportement optique métallique, mais ce n'est pas le cas pour les matériau au comportement optique diélectrique. C'est en observant comment le champ se comporte sous la surface à partir de la deuxième impulsion que l'on peut comprendre pourquoi. Dans le cas des propriétés optiques métalliques,  $\text{Re}(\tilde{n}) < \text{Im}(\tilde{n})$ , quand des LIPSSs

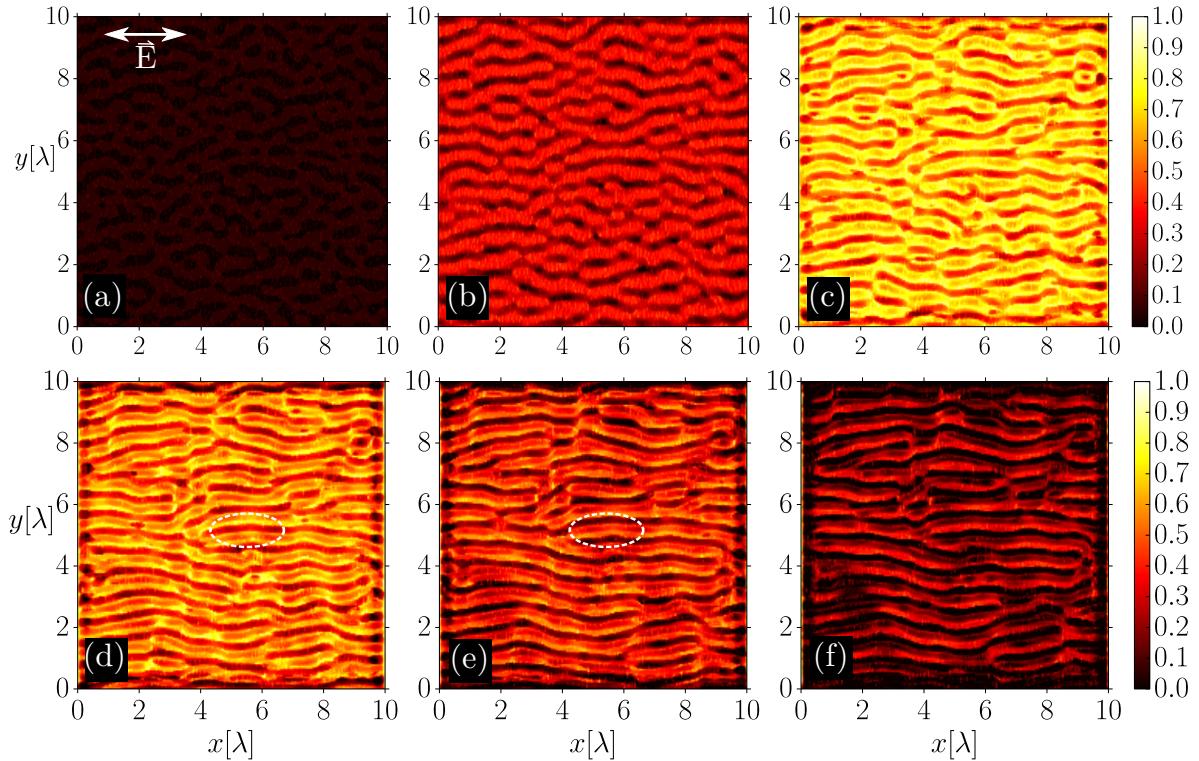


FIGURE 4.6: Échec de la croissance des structures de type-d avec le mécanisme d’ablation. Les paramètres sont  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega, \Delta s) = (2, 1, 0.11)$ . Les ovales pointillés aux figures (d) et (e) sont positionnés aux mêmes coordonnées et montrent un minimum devenir un maximum à l’impulsion suivante. En fait, tous les maxima et minima s’inversent entre chaque impulsion.

sont déjà présents à la surface, le champ d’une impulsion subséquente tend à être maximal là où la surface est minimale. L’ablation est alors plus importante sous les minima de la surface, entraînant une augmentation de l’amplitude des LIPSSs. C’est pourquoi les structures de type-s peuvent croître à la figure 4.2 avec le processus d’ablation inter-impulsion.

Si cela ne fonctionne pas avec les structures de type-d, c’est parce que le champ a plutôt tendance à être maximal là où la surface est maximale quand  $\text{Re}(\tilde{n}) > \text{Im}(\tilde{n})$ . L’ablation est alors plus importante là où les LIPSSs sont déjà présents et ceux-ci se font effacer entre chaque impulsion.

Pour pallier ce problème, il faut se pencher à nouveau sur les mécanismes de modification de la forme de la surface. Au début du chapitre, on a voulu simplifier autant que possible ce problème sachant qu’un grand nombre de phénomènes différents peuvent se produire à la surface près du seuil d’ablation. On a utilisé un processus d’ablation non physique qui vient *creuser* la surface là où l’intensité lumineuse moyenne est la plus forte. Ainsi, on englobe qualitativement tous les mécanismes qui diminuent le niveau de la surface aux maxima d’énergie.

Certains mécanismes peuvent agir de la façon inverse et augmenter le niveau de la surface là où

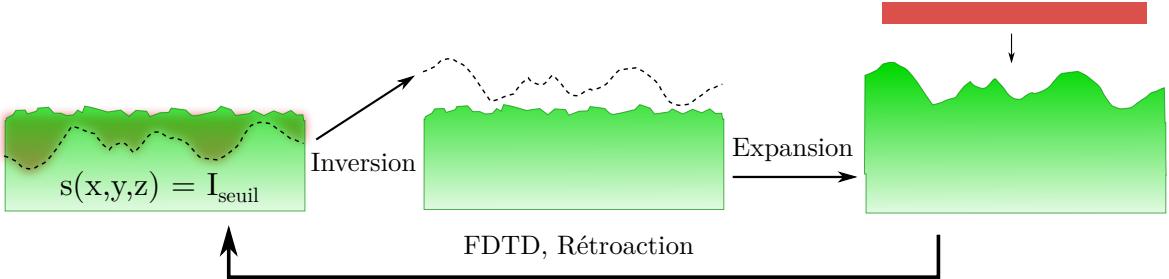


FIGURE 4.7: Représentation d'un cycle de la méthode de rétroaction inter-impulsion par expansion. La méthode est semblable au cas de l'ablation, mais une étape est rajoutée. L'isosurface  $s$  est inversée (réfléchie par rapport à  $z = 0$ ) avant de modifier la forme de la surface.

l'énergie est maximale, telle que la photo-expansion [59], très forte près du seuil d'ablation pour beaucoup de matériaux. C'est pourquoi on sépare alors tous les mécanismes de modification de la forme de la surface en deux catégories : ablation et expansion. Afin de permettre ce mécanisme inverse, on utilise la même méthode que précédemment, utilisant une intensité seuil et une isosurface, mais cette dernière est inversée avant de définir la nouvelle surface. Par exemple, si l'isosurface  $s(x,y,z)$  se trouve à cinq cellules sous la surface à un certain endroit, le mécanisme d'ablation y retire un nombre égal de cellules de matériau à cet endroit précis, tandis que le mécanisme d'expansion rajoutera cinq cellules au-dessus. Ceci est illustré à la figure 4.7. Afin de différencier ce nouveau mécanisme, des valeurs négatives de  $\Delta s$  seront utilisées.

L'ajout d'un mécanisme d'expansion permet d'introduire les notions de rétroaction constructive et destructive. Tel que représenté à la figure 4.8, si l'énergie est maximale là où la surface est minimale, il y aura rétroaction constructive dans le cas  $\Delta s > 0$  (ablation) ou rétroaction destructive dans le cas  $\Delta s < 0$  (expansion). Inversement, tel que représenté à la figure 4.9, si l'énergie est maximale là où la surface est maximale, il y aura rétroaction destructive dans le cas  $\Delta s > 0$  ou rétroaction constructive dans le cas  $\Delta s < 0$ .

Il est difficile de déterminer à l'avance où l'énergie sera maximale. Dans le cas d'un comportement optique peu absorbant,  $\text{Re}(\tilde{n}) > \text{Im}(\tilde{n})$ , le champ sera toujours maximal sous les maxima de la surface, car ces derniers agissent comme des lentilles convergentes. Mais ce n'est pas aussi clair quand  $\text{Re}(\tilde{n}) < \text{Im}(\tilde{n})$  et deux hypothèses peuvent être faites. D'abord, le champ est absorbé très rapidement, ce qui atténue l'effet de lentille, car le champ n'a pas le temps de converger. Ensuite, il est très difficile de prévoir comment se comportent les SPPs localement avec la présence de LIPSSs.

#### 4.2.3 Régime d'expansion

**Type-d.** Après l'échec de la simulation de la croissance des structures de type-d en régime d'ablation, on peut maintenant essayer, avec les mêmes paramètres qu'à la figure 4.6, mais en

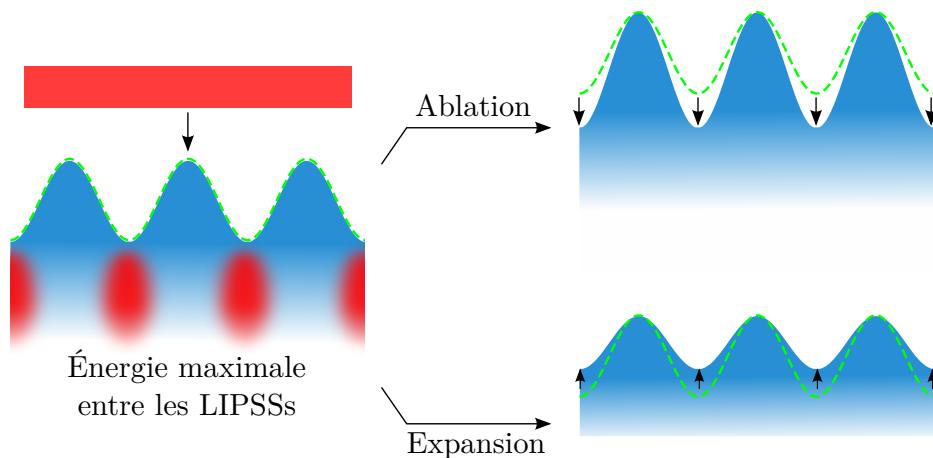


FIGURE 4.8: Si l'énergie de l'impulsion incidente est dirigée vers les minima de la surface (en rouge), un processus d'ablation viendrait creuser ces minima, ce qui augmentera l'amplitude des structures (rétroaction constructive). Un processus d'expansion remplirait les minima et la surface s'aplatirait (rétroaction destructive).

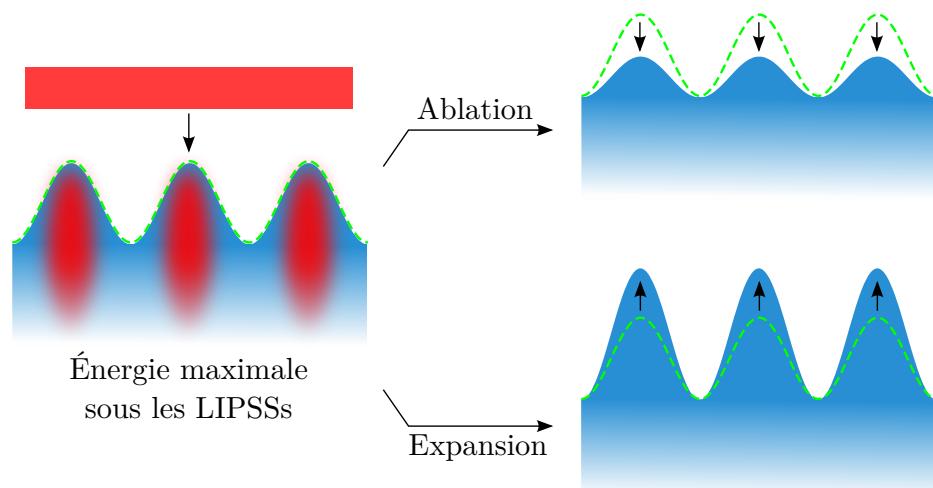


FIGURE 4.9: Si l'énergie de l'impulsion incidente est dirigée vers les maxima de la surface (en rouge), un processus d'ablation viendrait creuser les maxima, ce qui diminuera l'amplitude des structures (rétroaction destructive). Un processus d'expansion ferait grandir les structures (rétroaction constructive).

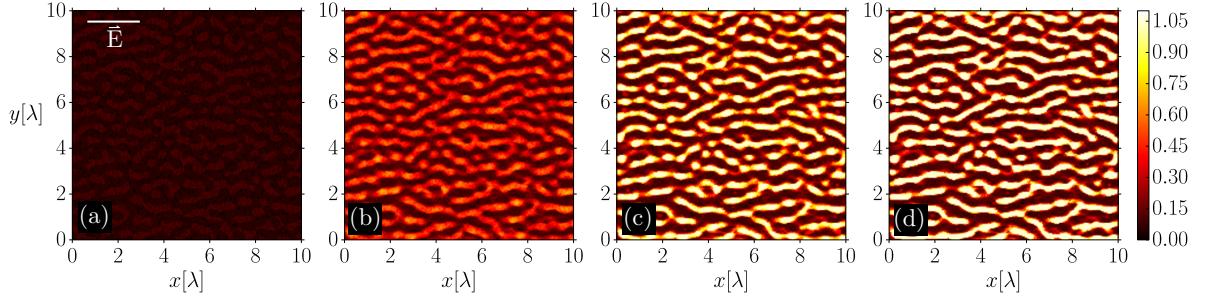


FIGURE 4.10: Croissance de structures de type-d sur 4 cycles de rétroaction inter-impulsion par expansion. Les paramètres sont  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega, \Delta s) = (2, 1, -0.11)$ . Les nombres d'impulsions sont  $N = 1, 2, 3$  et 4 en (a), (b), (c) et (d) respectivement.

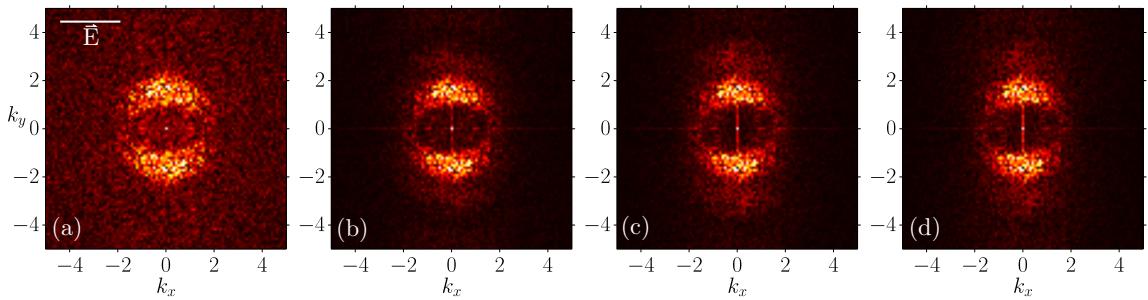


FIGURE 4.11: Transformées de Fourier des figures 4.10 (a) à (d).

régime d'expansion, soient  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega, \Delta s) = (2, 1, -0.11)$ . On obtient la figure 4.10 dans le domaine spatial et ses transformées de Fourier à la figure 4.11.

Cette fois, l'amplitude des structures croît d'une impulsion à l'autre et les maxima et minima ne s'inversent plus. Un aspect intéressant qui se distingue des autres types de structures est que celles-ci ne semblent pas nécessiter d'aucune forme d'auto-organisation. Les structures de type-d sont en effet déjà définies après une première impulsion, bien que leur amplitude soit toujours très faible. C'est un résultat auquel on pouvait s'attendre, car on a vu au dernier chapitre, à la figure 3.13, que le champ obtient une forme périodique assez bien définie avec seulement une simple interaction avec la surface rugueuse, ce qui était loin d'être le cas pour les structures de type-s à la figure 3.14.

**Structures de type-d sur des métaux.** Les solutions analytiques de la théorie de Sipe-Drude du chapitre 2 prévoient la formation de structures de type-s sur des métaux ou des diélectriques fortement ionisés. Leur croissance a été simulée avec un processus de rétroaction inter-impulsion par ablation à la figure 4.2. Les solutions analytiques prévoient également la formation de structures de type-d sur des diélectriques quand  $\text{Re}(\tilde{n}) > \text{Im}(\tilde{n})$  et leur croissance a été simulée avec le processus inverse d'expansion. Mais les expériences ont démontré que des structures de type-d peuvent être formées sur des métaux [30, 41], ce qui est contraire à ce

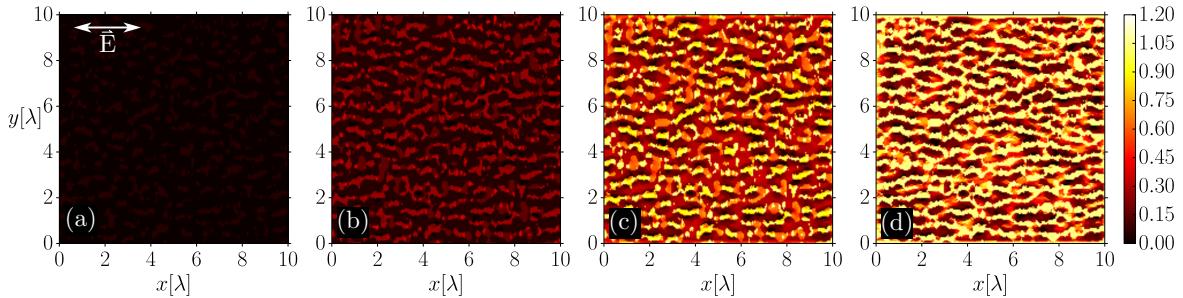


FIGURE 4.12: Croissance de structures de type-d sur 9 cycles de rétroaction inter-impulsion par expansion. Les paramètres sont  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega, \Delta s) = (6,1, -0.16)$ . Les nombres d'impulsions sont  $N = 1, 3, 5$  et  $9$  en (a), (b), (c) et (d) respectivement.

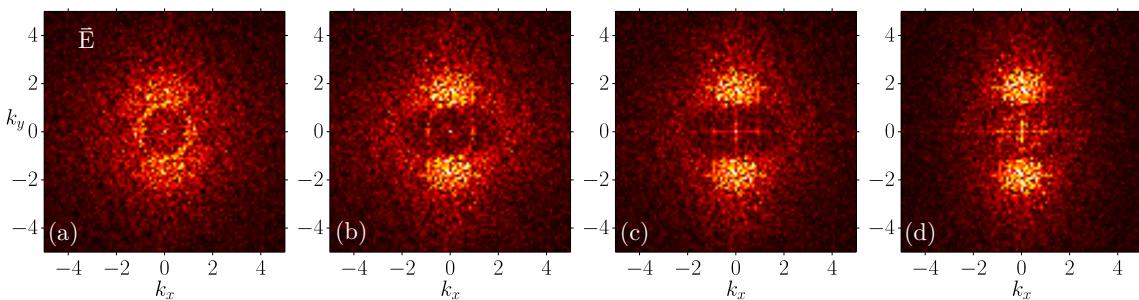


FIGURE 4.13: Transformées de Fourier des figures 4.12 (a) à (d).

que prévoient les solutions analytiques, ainsi que les simulations sans rétroaction du chapitre 3.

Maintenant armé des notions de rétroaction constructive et destructive, on effectue 9 cycles de rétroaction avec les paramètres  $(\omega_p/\omega, \gamma/\omega, \Delta s) = (6,1, -0.16)$ . Ceci correspond à un matériau ayant des propriétés optiques métalliques et un régime d'expansion. Les figures 4.12 et 4.13 sont ainsi obtenues et montrent la formation de structures de type-d.

Les mêmes paramètres, mais avec le processus d'ablation, mènent aux mêmes structures de type-s qu'aux figures 4.2 et 4.3. Ainsi, le choix du processus d'expansion ne peut pas que changer l'amplitude des structures, mais carrément leur type. Cette simulation suggère alors que la formation de structures de type-d sur des métaux est possible si le processus de modification de la forme de la surface est du genre expansion plutôt qu'ablation.

**Résumé.** Les différentes simulations de ce chapitre montrent des résultats pour des paramètres précis. Les fenêtres de paramètres qui mènent vers chaque type de structures n'ont pas été suffisamment étudiées pour tracer un tableau complet. La référence [53] trace une partie de ce portrait pour  $\Delta s > 0$  (ablation uniquement) et  $\gamma/\omega = 0.39$ . Le tableau pour différentes valeurs de  $\gamma/\omega$  et permettant  $\Delta s < 0$  n'a pas été fait, mais on en sait assez pour tirer certaines grandes lignes illustrées à la figure 4.14.

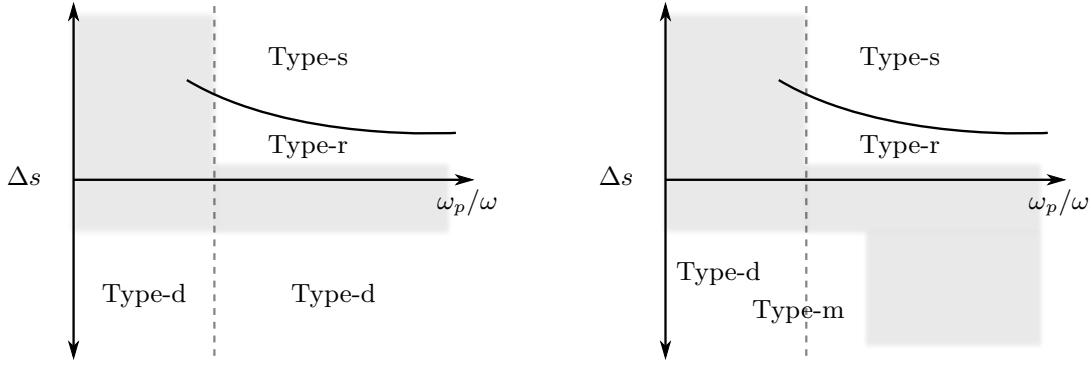


FIGURE 4.14: Résumé approximatif des fenêtres d'apparition de certains types de structures en fonction des trois paramètres de la méthode de rétroaction inter-impulsion. Le graphique de gauche est pour  $\gamma/\omega \gtrsim 1/4$  et à droite, pour  $\gamma/\omega \lesssim 1/4$ . Les régions grises ne montraient pas de structures bien définies. La ligne pointillée verticale indique la position du seuil critique  $(\omega_p/\omega)_c$ .

Les structures de type-s sont présentes quand  $\omega_p/\omega \gtrsim (\omega_p/\omega)_c$  et  $\Delta s \gtrsim \lambda/20$ . Donc, pour des matériaux fortement absorbants tels que des métaux ou des diélectriques très ionisés et pour une profondeur d'ablation au-dessus d'un certain seuil. Si  $\Delta s$  est très petit (un matériau très résistant à l'ablation pourrait causer cette faible valeur), ce sont des structures de type-r qui apparaissent.

Les structures de type-d sont présentes quand  $\Delta s \lesssim -\lambda/20$  et  $\gamma/\omega \gtrsim 1/4$ . Elles sont mieux définies quand  $\omega_p/\omega < (\omega_p/\omega)_c$ , mais sont également présentes dans le cas sur-critique. À  $\gamma/\omega \lesssim 1/4$ , les structures de type-d évoluent vers des structures de type-m en s'approchant du seuil critique et même un peu au-delà, mais aux grandes fréquences de plasma, il n'y a plus de structures apparentes qui peuvent croître.



# Conclusion

Depuis la venue des lasers picosecondes et femtosecondes, une grande variété de formes de réseaux de surface a été découverte. La théorie en place depuis trois décennies, la théorie de Sipe-Drude, a ainsi atteint ses limites et il est devenu nécessaire de se tourner vers de nouvelles méthodes. Les méthodes numériques, puissantes et versatiles, sont une valeur sûre quand les méthodes analytiques deviennent trop complexes. C'est pourquoi on a utilisé la méthode FDTD pour étudier, en premier temps, la forme du champ lors de son interaction avec une cible solide, puis l'impact qu'a ce champ sur la forme de la surface. On a ainsi réussi à simuler la croissance de diverses structures avec un modèle prenant en compte la rétroaction inter-impulsion proposée par Skolski *et. al.* [53] qu'on a étendu afin d'inclure les notions de rétroaction constructive et destructive.

Afin de résumer plus précisément ce qui a été fait, voici un survol découpé par chapitre.

Le premier chapitre a permis de se familiariser avec un certain nombre de méthodes analytiques et numériques et de survoler certaines interactions entre matière et rayonnement. Les effets thermiques d'une impulsion laser sont présentés dans le but d'étudier, éventuellement, la formation d'une phase liquide à la surface. Cette phase pourrait entraîner un comportement différent lors de la formation des réseaux de surface. Cet aspect déborde largement le cadre du mémoire et n'a pas été poussé plus avant. La seconde partie du chapitre s'intéresse à la formation de plasma dans le matériau durant l'irradiation laser et aux changements associés des propriétés optiques.

Au chapitre 2, les solutions analytiques de la théorie de Sipe ont été utilisées sur deux cas précis, soient les deux types de structures qu'elles peuvent prédire correctement. D'abord, le cas de l'aluminium est typique des solutions de la théorie de Sipe quand  $\text{Re}(\tilde{n}) < \text{Im}(\tilde{n})$  et la formation de structures de type-s est prédictive. Puis, le cas du silicium qui est typique des solutions quand  $\text{Re}(\tilde{n}) > \text{Im}(\tilde{n})$  et qui résulte en des structures de type-d. Le modèle de Drude est ensuite ajouté aux équations de Sipe afin de prendre en compte les changements de propriétés optiques du matériau causés par la génération d'un plasma dense lors de l'irradiation laser intense. On peut ainsi trouver un seuil critique de fréquence de plasma  $(\omega_p/\omega)_c$  autour duquel on observe une transition des structures de type-d vers des structures de type-s.

La méthode FDTD est ensuite introduite au chapitre 3 et appliquée au problème de la propagation d'une onde plane incidente dans un matériau solide à surface rugueuse. Un autre seuil est trouvé pour le second paramètre du modèle de Drude, soit  $\gamma/\omega \sim 1/4$ . Ce seuil va dépendre du matériau et de  $\epsilon$ , sa permittivité sans excitation, mais sera toujours présent. Au-dessus de cette valeur, la même transition du comportement de type-d vers type-s est trouvée, comme au chapitre 2. En dessous du seuil, le comportement de type-d devient de type-m et se superpose au comportement de type-s. Des structures bidimensionnelles croisées sont alors prédictes.

Toujours au chapitre 3, l'étude de l'interaction du champ avec une inhomogénéité de surface unique permet de reproduire les résultats expérimentaux qui confirment l'importance des SPPs (*surface plasmon polaritons*) lors de la formation des LIPSSs de type-s. On trouve également que des RR (radiation remnants) sont excités simultanément dans la direction orthogonale lorsqu'on utilise les mêmes propriétés optiques nécessaires pour la formation de structures croisées. L'étude des interactions avec une seule inhomogénéité est très prometteuse, car la forme du champ, dans l'espace de Fourier, permet de retrouver pratiquement les mêmes solutions qu'en utilisant une surface rugueuse, un calcul beaucoup plus lourd numériquement.

Au chapitre 4, on a ajouté un processus de modification de la forme de la surface en fonction des irrégularités du champ. Une rétroaction est alors possible lorsqu'on envoie une nouvelle impulsion sur la nouvelle surface et le processus peut être répété autant de fois que nécessaire. Cette rétroaction permet également à une faible organisation initiale, suivant la première impulsion, de se s'auto-renforcer, menant à un processus d'auto-organisation. Ce processus de modification de la forme de la surface est non physique, c'est-à-dire qu'il ne fait que reproduire qualitativement les effets d'une ablation laser en retirant la partie du matériau qui a été exposé à une intensité dépassant un certain seuil.

Certains types de structures ne peuvent croître avec ce processus d'ablation, alors un processus inverse d'expansion a été proposé. Ce second mécanisme permet de faire croître des structures de type-d sur des matériaux transparents et sur des matériaux absorbants, contrairement à la théorie de Sipe-Drude, mais en accord avec les expériences.

**Perspectives.** On peut mentionner trois propositions qui pourraient diriger la suite de ces travaux.

La première proposition est la plus simple, car il ne reste qu'un pas à faire. Avec les résultats du chapitre 1 sur la formation de plasma, on peut ajouter un terme de couplage avec l'énergie thermique et obtenir un modèle à deux températures très complet afin d'étudier les effets thermiques des interactions très intenses entre laser et matière. L'accumulation thermique peut ensuite être étudiée en considérant un train d'impulsions.

La seconde proposition, probablement la plus importante, est la prise en compte de la rétroaction intra-impulsion. Ce cas de rétroaction est très souvent pointé comme l'élément manquant

principal des modèles actuels [53, 60]. Cela serait possible en combinant les calculs du premier chapitre aux simulations FDTD afin de permettre à la densité du plasma de varier en fonction du temps, de l'espace et du champ local. Une autre façon, plus complète, serait l'utilisation d'un algorithme dit Particle-in-cell (PIC), semblable à l'algorithme Maker-and-cell (MAC) qui sera présenté à l'annexe C. Si MAC permet de simuler un fluide respectant la dynamique de Navier-Stokes, PIC permet de simuler la dynamique d'un plasma interagissant avec une source de rayonnement. Contrairement aux calculs simulant un plasma homogène (le modèle de Drude), un calcul PIC simule un plasma dont la dynamique varie en fonction du temps et de l'espace [61].

Plusieurs résultats seraient alors accessibles : (i) l'auto-organisation à une seule impulsion et une très probable amélioration des résultats, et (ii), la dépendance entre la forme des structures et la durée des impulsions [62]. (iii) Avec une description plus précise de l'ionisation multiphotonique qui tient compte des résonances, il serait également possible de comparer ces nouveaux effets avec une expérience facilement réalisable dans les laboratoires du centre d'optique, photonique et laser et la source laser blanche fraîchement installée.

Ces nouvelles simulations auraient également l'avantage d'utiliser une variable indépendante plus intuitive et pratique pour les expérimentateurs, la fluence du laser par exemple, plutôt que la fréquence de plasma. Finalement, l'utilisation des deux types de rétroaction, intra- et inter-impulsion, pourrait donner des résultats intéressants, mais difficiles à prévoir.

La dernière proposition est l'amélioration des mécanismes d'ablation ou d'expansion utilisés au chapitre 4. La formation d'une phase liquide et le transport de matériau géré par les équations de Navier-Stokes sont une possibilité prometteuse. L'annexe C présente à cet égard la méthode numérique MAC pouvant traiter la dynamique des fluides en présence d'une surface libre, une surface dont la position n'est pas fixée dans le temps et l'espace.



## Annexe A

# Source thermique et fonction de Green

Afin de démontrer l'équation 1.6, il faut bien comprendre ce qu'est la fonction de Green. Celle-ci est la solution du problème de diffusion, avec une source unitaire, concentrée en un point spatial et instantané dans une géométrie précise. La condition initiale est fixée à 0 et les conditions frontières également (la fonction de Green est nulle aux frontières). On s'attend à une solution du type  $G \rightarrow G(\vec{r}, \vec{r}', t - t')$  souvent écrite par convention  $G(\vec{r}, t | \vec{r}', t')$ , avec  $\vec{r}'$ , la position de l'impulsion et  $t'$ , le moment de l'impulsion. On sait que la fonction de Green sera une fonction de  $t - t'$ , parce qu'elle est par définition nulle avant  $t'$  et qu'elle ne dépend que du temps écoulé après  $t'$ . Le temps absolu de l'impulsion n'importe guère. On peut donc écrire

$$\frac{1}{\alpha} \frac{\partial G(\vec{r}, t | \vec{r}', t')}{\partial t} = \nabla^2 G(\vec{r}, t | \vec{r}', t') \quad (t > t'), \quad (\text{A.1})$$

$$\frac{1}{\alpha} \frac{\partial G(\vec{r}, t | \vec{r}', t')}{\partial t'} = -\nabla^2 G(\vec{r}, t | \vec{r}', t') \quad (t' < t). \quad (\text{A.2})$$

Le signe négatif de la dernière égalité provient du fait que la fonction de Green est une fonction de  $t - t'$ , donc que  $\frac{\partial}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial t'}$ . On cherche une solution du type  $T \rightarrow T(\vec{r}, t)$  à l'équation de la chaleur

$$\frac{1}{\alpha} \frac{\partial T(\vec{r}, t)}{\partial t} = \nabla^2 T(\vec{r}, t) + \frac{g(\vec{r}, t)}{k} \quad (t > 0,) \quad (\text{A.3})$$

$$\frac{1}{\alpha} \frac{\partial T(\vec{r}', t')}{\partial t'} = \nabla^2 T(\vec{r}', t') + \frac{g(\vec{r}', t')}{k} \quad (t' < t). \quad (\text{A.4})$$

On a substitué  $t$  par  $t'$  avec la contrainte  $(t' < t)$ , car  $t$  sera la borne d'intégration supérieure dans quelques étapes afin d'avoir la solution en fonction de  $t$ . Ensuite, on écrit

$$\begin{aligned} \frac{\partial G(\vec{r}, t | \vec{r}', t') T(\vec{r}', t')}{\partial t'} &= G(\vec{r}, t | \vec{r}', t') \frac{\partial T(\vec{r}', t')}{\partial t'} + T(\vec{r}', t') \frac{\partial G(\vec{r}, t | \vec{r}', t')}{\partial t'} \\ &= G(\vec{r}, t | \vec{r}', t') \alpha \left( \nabla^2 T(\vec{r}', t') + \frac{g(\vec{r}', t')}{k} \right) + T(\vec{r}', t') (-\alpha \nabla^2 G(\vec{r}, t | \vec{r}', t')) \\ &= \alpha [G(\vec{r}, t | \vec{r}', t') \nabla^2 T(\vec{r}', t') - T(\vec{r}', t') \nabla^2 G(\vec{r}, t | \vec{r}', t')] \\ &\quad + \alpha G(\vec{r}, \vec{r}', t - t') \frac{g(\vec{r}', t')}{k}. \end{aligned} \quad (\text{A.5})$$

On intègre ensuite sur  $dV'$  et  $dt'$

$$\begin{aligned} & \int_{t'=0}^t \iiint_{V'} \frac{\partial}{\partial t'} G(\vec{r}, t | \vec{r}', t') T(\vec{r}', t') dV' dt' \\ &= \alpha \int_{t'=0}^t \iiint_{V'} [G(\vec{r}, t | \vec{r}', t') \nabla^2 T(\vec{r}', t') - T(\vec{r}', t') \nabla^2 G(\vec{r}, t | \vec{r}', t')] dV' dt' \\ &+ \alpha \int_{t'=0}^t \iiint_{V'} G(\vec{r}, t | \vec{r}', t') \frac{g(\vec{r}', t')}{k} dV' dt'. \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

Pour le côté gauche, on peut évaluer directement l'intégrale en  $t'$  et pour le premier terme du côté droit, il faut appliquer le théorème de Green

$$\iiint_V \nabla^2 u dV = \sum_{i=1}^N \iint_{S_i} \frac{\partial u}{\partial n_i} dS_i. \quad (\text{A.7})$$

Avec les  $N$  surfaces entourant le volume  $V$  et  $n_i$ , la normale à la surface  $S_i$  (pointant vers l'extérieur). Donc, le premier terme du côté droit de A.6 devient

$$\begin{aligned} & \alpha \int_{t'=0}^t \iiint_{V'} [G(\vec{r}, t | \vec{r}', t') \nabla^2 T(\vec{r}', t') - T(\vec{r}', t') \nabla^2 G(\vec{r}, t | \vec{r}', t')] dV' dt' \\ &= \alpha \sum_{i=1}^N \int_{t'=0}^t \iint_{S'_i} G(\vec{r}, t | \vec{r}', t')|_{S_i} \frac{\partial T(\vec{r}', t')}{\partial n_i} dS'_i dt' - T(\vec{r}', t')|_{S_i} \frac{\partial G(\vec{r}, t | \vec{r}', t')}{\partial n_i} dS'_i dt'. \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

Par définition de la fonction de Green les conditions frontières sont homogènes,  $\frac{\partial G(\vec{r}, t | \vec{r}', t')}{\partial n_i} = 0$ , tout au long de l'intégration sur la surface. L'équation A.6 s'écrit maintenant

$$\begin{aligned} & \iiint_{V'} G(\vec{r}, t | \vec{r}', t')|_{t'=t} T(\vec{r}', t')|_{t'=t} dV' - \iiint_{V'} G(\vec{r}, t | \vec{r}', t')|_{t'=0} T(\vec{r}', t')|_{t'=0} dV' \\ &= \alpha \sum_{i=1}^N \int_{t'=0}^t \iint_{S'_i} G(\vec{r}, t | \vec{r}', t')|_{S_i} \frac{\partial T(\vec{r}', t')}{\partial n_i} dS'_i dt' + \alpha \int_{t'=0}^t \iiint_{V'} G(\vec{r}, t | \vec{r}', t') \frac{g(\vec{r}', t')}{k} dV' dt'. \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

Le premier terme du côté gauche est simplement la solution  $T(\vec{r}, t)$ , car  $\iiint_{V'} G(\vec{r}, t | \vec{r}', t')|_{t'=t} dV' = 1$  de par la nature unitaire de la fonction de Green. Dans le deuxième terme du côté gauche, on connaît l'expression  $T(\vec{r}', t')|_{t'=0}$ , qui est la condition initiale  $F(\vec{r}')$ . Puis, les  $\frac{T(\vec{r}', t')}{\partial n_i}$  sont les expressions des conditions frontières notées  $\frac{f_i(\vec{r}', t')}{k}$ . On obtient finalement

$$\begin{aligned} T(\vec{r}, t) &= \int_{V'} G(\vec{r}, t | \vec{r}', t')|_{t'=0} F(\vec{r}') dV' \\ &+ \frac{\alpha}{k} \int_{t'=0}^t \iint_{V'} G(\vec{r}, t | \vec{r}', t') g(\vec{r}', t') dV' dt' \\ &+ \alpha \sum_{i=1}^N \left[ \int_{t'=0}^t \iint_{S'_i} G(\vec{r}, t | \vec{r}', t')|_{S_i} \frac{1}{k} f_i(\vec{r}', t') dS'_i dt' \right]. \end{aligned} \quad (\text{A.10})$$

## Annexe B

# Impulsion gaussienne et génération de plasma

Certains cas intéressants de solutions pour les équations (1.65) et (1.66) sont présentés dans cette annexe. Les paramètres sont indiqués dans le tableau 1.2 et dans les descriptions des figures.

Le premier cas, l'impulsion longue,  $t_0 = 20$  ns et  $F = 0.088 \text{ J/cm}^2$ , apparaît aux figures B.1 et B.2. La valeur de la fluence a été choisie afin d'atteindre une ionisation maximale correspondant précisément au seuil critique  $(\omega_p/\omega)_c$ . L'ionisation multiphotonique a été négligeable tout au long de l'interaction, tel qu'attendu, car on a vu que, pour des intensités typiques d'une impulsion nanoseconde, la probabilité d'ionisation multiphotonique est presque nulle par rapport à la probabilité d'ionisation par impact ( $p_{\text{imp}} \gg p_{\text{mph}}$ ). On constate également que l'ionisation par impact se produit principalement en surface et que l'absorption linéaire est le mécanisme dominant en profondeur.

Ensuite, le cas d'une impulsion courte,  $t_0 = 5$  fs et  $F = 0.034 \text{ J/cm}^2$ , est présenté aux figures B.3 et B.4. La fluence est à nouveau choisie afin d'atteindre  $(\omega_p/\omega)_c$  à la surface. L'ionisation multiphotonique domine, mais l'ionisation par impact est toujours importante. En profondeur, c'est encore l'absorption linéaire qui est la plus importante en conséquence de la baisse d'intensité.

Le dernier exemple est une impulsion courte très intense ( $t_0 = 20$  fs,  $F = 0.1 \text{ J/cm}^2$ ) dont les résultats sont présentés aux figures B.5 et B.6. Ce cas est intéressant à cause du changement drastique du comportement près du maximum de l'intensité. La réflectivité devient très importante quelques femtosecondes avant ce maximum d'intensité et l'absorption devient si forte que la deuxième moitié de l'impulsion devient très faible en profondeur.

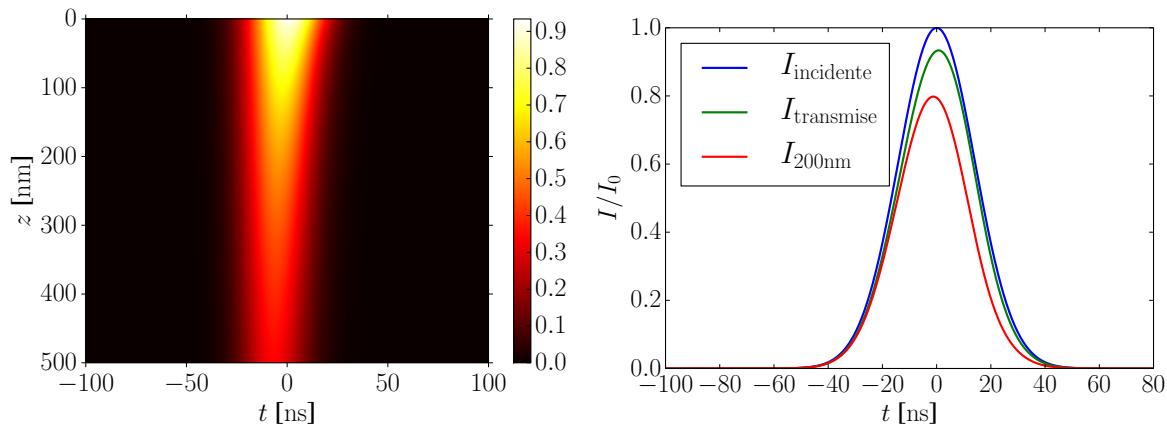


FIGURE B.1: Intensité d'une impulsion longue ( $t_0 = 20$  ns,  $F = 0.088$  J/cm<sup>2</sup>) en fonction du temps  $t$  et de la profondeur  $z$  lors de sa propagation dans un matériau. À droite apparaissent le profil temporel avant la réflexion,  $I_{\text{incidente}}$ , le profil temporel transmis à  $z = 0$ ,  $I_{\text{transmise}}$  et le profil temporel à  $z = 200$  nm,  $I_{200\text{nm}}$ . Les paramètres sont définis au tableau 1.2 et la discrétisation est  $\Delta t = 0.2$  ns et  $\Delta z = 5$  nm.

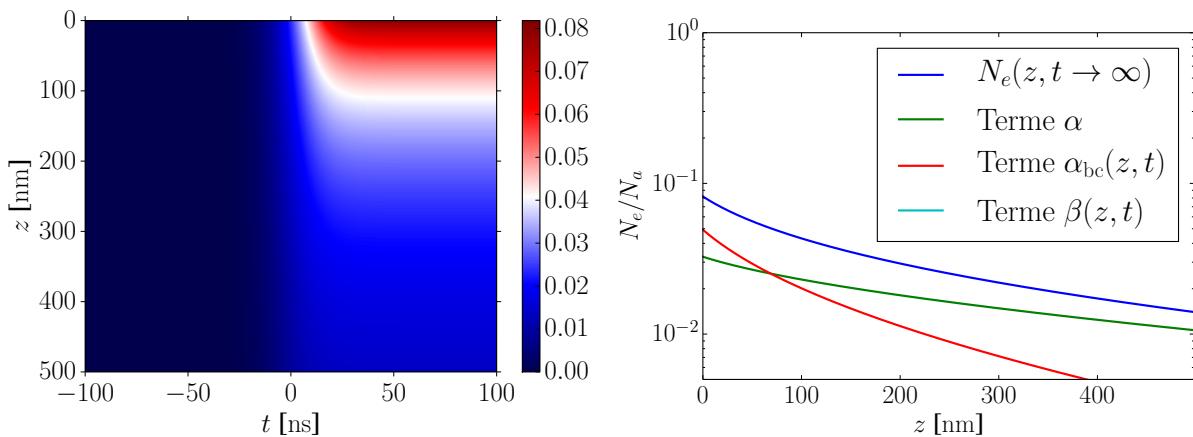


FIGURE B.2: Ionisation entraînée par une impulsion longue ( $t_0 = 20$  ns,  $F = 0.088$  J/cm<sup>2</sup>) en fonction du temps  $t$  et de la profondeur  $z$  lors de sa propagation dans un matériau. À droite, on compare l'ionisation finale totale et les contributions individuelles de chacun des trois termes de (1.59). Dans le cas présent, l'ionisation par impact domine sur les 70 premiers nanomètres de profondeur, alors que l'absorption linéaire est ensuite prépondérante et l'ionisation multiphotonique est négligeable. Les paramètres sont définis au tableau 1.2 et la discrétisation est  $\Delta t = 0.2$  ns et  $\Delta z = 5$  nm.

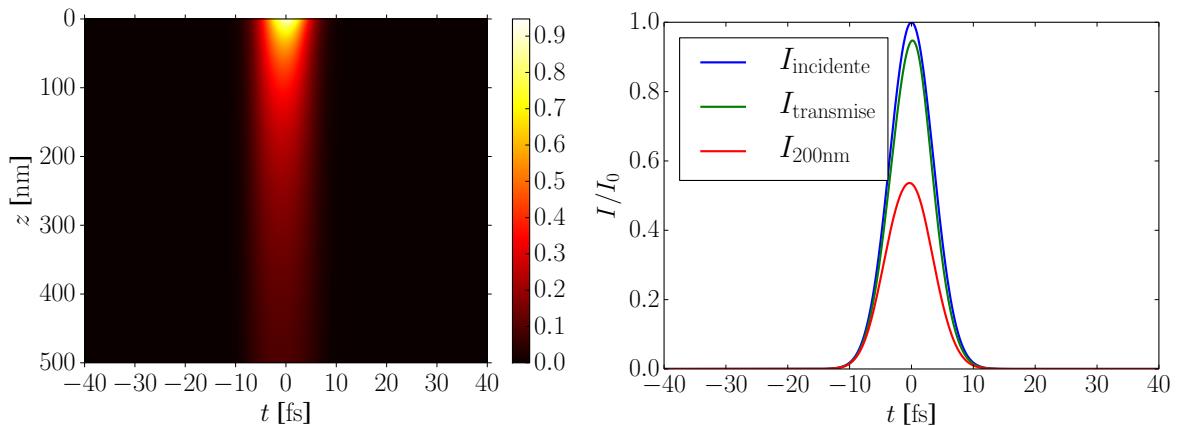


FIGURE B.3: Intensité d'une impulsion très courte ( $t_0 = 5$  fs,  $F = 0.034$  J/cm<sup>2</sup>) en fonction du temps  $t$  et de la profondeur  $z$  lors de sa propagation dans un matériau. À droite apparaissent le profil temporel avant la réflexion,  $I_{\text{incidente}}$ , le profil temporel transmis à  $z = 0$ ,  $I_{\text{transmise}}$  et le profil temporel à  $z = 200$  nm,  $I_{200\text{nm}}$ . Les paramètres sont définis au tableau 1.2. et la discrétisation est  $\Delta t = 0.08$  fs et  $\Delta z = 5$  nm

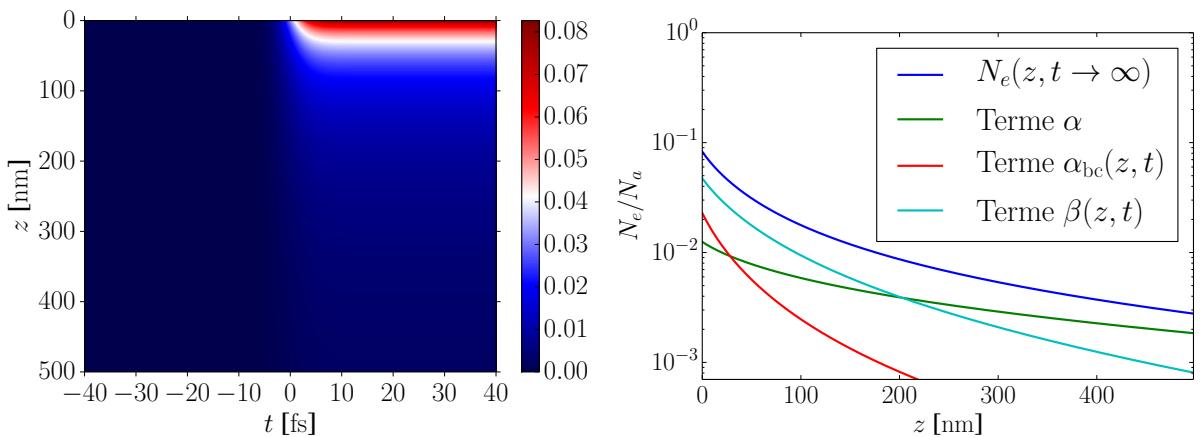


FIGURE B.4: Ionisation entraînée par une impulsion très courte ( $t_0 = 5$  fs,  $F = 0.034$  J/cm<sup>2</sup>) en fonction du temps  $t$  et de la profondeur  $z$  lors de sa propagation dans un matériau. À droite, on compare l'ionisation finale totale et les contributions individuelles de chacun des trois termes de (1.59). Dans le cas présent, l'ionisation multiphotonique domine sur les 200 premiers nanomètres, puis l'absorption linéaire. L'ionisation par impact a un rôle important dans les quelques premiers nanomètres. Les paramètres sont définis au tableau 1.2. et la discrétisation est  $\Delta t = 0.08$  fs et  $\Delta z = 5$  nm

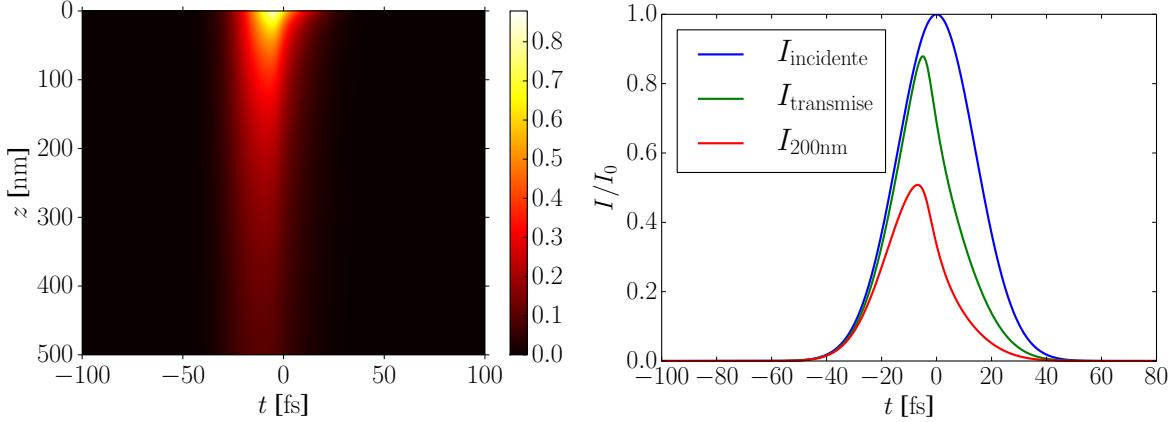


FIGURE B.5: Intensité d’une impulsion courte et intense ( $t_0 = 20$  fs,  $F = 0.1$  J/cm $^2$ ) en fonction du temps  $t$  et de la profondeur  $z$  lors de sa propagation dans un matériau. À droite apparaissent le profil temporel avant la réflexion,  $I_{\text{incidente}}$ , le profil temporel transmis à  $z = 0$ ,  $I_{\text{transmise}}$  et le profil temporel à  $z = 200$  nm,  $I_{200\text{nm}}$ . Les paramètres sont définis au tableau 1.2. et la discréétisation est  $\Delta t = 0.2$  fs et  $\Delta z = 5$  nm

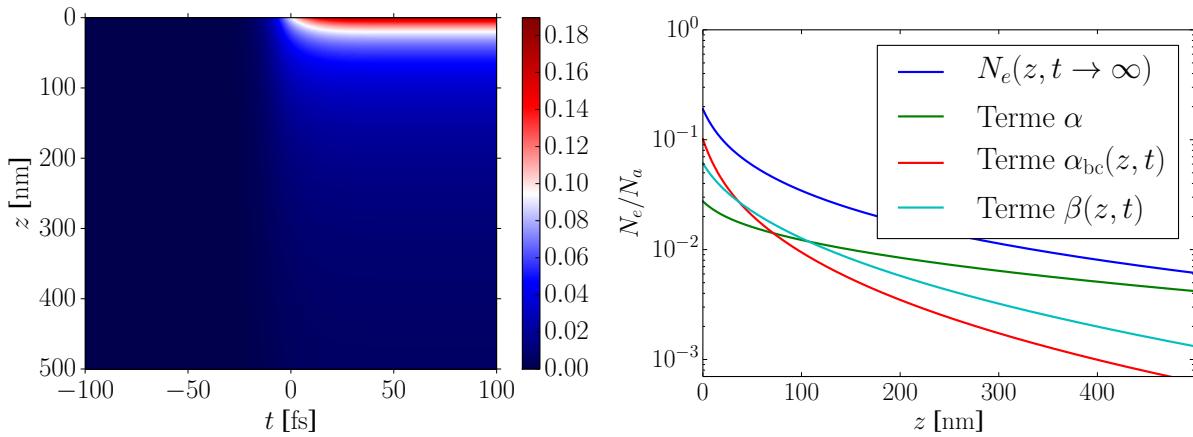


FIGURE B.6: Ionisation entraînée par une impulsion courte et intense ( $t_0 = 20$  fs,  $F = 0.1$  J/cm $^2$ ) en fonction du temps  $t$  et de la profondeur  $z$  lors de sa propagation dans un matériau. À droite, on compare l’ionisation finale totale et les contributions individuelles de chacun des trois termes de (1.59). Comme dans le cas de même durée et de fluence plus faible, les trois différents mécanismes sont importants. Les paramètres sont définis au tableau 1.2. et la discréétisation est  $\Delta t = 0.2$  fs et  $\Delta z = 5$  nm

## Annexe C

# Dynamique de la phase liquide

Les processus de modification de la forme de la surface après l'irradiation laser ont été abordés au chapitre 4. Voulant proposer un modèle simple avec un nombre minimal de paramètres, les deux processus proposés, soient ablation et expansion, servent plutôt à observer l'évolution qualitative des structures d'une impulsion à l'autre. On peut décrire la période et l'orientation assez bien, on peut aussi savoir si l'amplitude des structures croît ou décroît d'une impulsion à l'autre, mais ce modèle ne peut décrire de façon réaliste l'amplitude finale des structures, la largeur individuelle ou la forme précise des maxima locaux et bien d'autres éléments plus quantitatifs.

En plus de l'ajout de rétroaction intra-impulsion au modèle, une autre avenue intéressante au projet est de décrire d'une façon plus réaliste l'évolution de la forme de la surface. Il faudrait alors remplacer les processus non physiques, qualitatifs, par un ou des processus physiques et quantitatifs. Le cas étudié dans cette annexe est le transport de matériau sous forme liquide, qui a été démontré à plusieurs reprises comme un élément important lors de la formation des LIPSSs [17, 18, 19].

L'objectif de cette annexe est de décrire une méthode, nommée Marker and Cell (MAC) [63], pouvant simuler le transport de matériau liquéfié dans un contexte où l'interface du liquide avec l'environnement est libre de changer dans l'espace en fonction des mouvements internes du liquide. Par contre, la technique ne sera pas appliquée aux LIPSSs, mais à une situation plus simple dans le but de montrer son fonctionnement. La situation en question est la chute d'une goutte dans un réservoir liquide. Un couplage avec l'équation de la chaleur est également fait afin de montrer que la méthode MAC permet facilement ce couplage.

Cette annexe pose ainsi les bases numériques et conceptuelles pour une éventuelle application au transport de matériau lors de la formation de réseaux de surface.

## C.1 Équations de Navier-Stokes

Les équations utilisées pour décrire les mouvements internes dans un fluide sont les équations de Navier-Stokes. Leur version cartésienne en deux dimensions et pour un fluide incompressible est

$$\frac{\partial u}{\partial t} + \frac{\partial u^2}{\partial x} + \frac{\partial uv}{\partial y} + \frac{\partial \phi}{\partial x} = \nu \left( \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} \right) - g_x, \quad (\text{C.1})$$

$$\frac{\partial v}{\partial t} + \frac{\partial v^2}{\partial y} + \frac{\partial uv}{\partial x} + \frac{\partial \phi}{\partial y} = \nu \left( \frac{\partial^2 v}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} \right) - g_y, \quad (\text{C.2})$$

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} = 0. \quad (\text{C.3})$$

Les variables  $u$  et  $v$  sont les champs de vitesses respectivement en  $x$  et  $y$  en m/s. Le champ de pression  $\phi$  est en  $\text{m}^2/\text{s}^2$ . Les distances  $x$  et  $y$  sont en mètres et le temps  $t$  en secondes. Le paramètre de viscosité  $\nu$  est en  $\text{m}^2/\text{s}$  et les termes externes  $g_x$  et  $g_y$  sont en  $\text{m}/\text{s}^2$ . Les deux premières équations représentent la conservation de l'énergie inertuelle et la troisième sert à faire respecter l'incompressibilité du fluide.

**Analyse dimensionnelle.** On introduit les variables sans dimension

$$\begin{aligned} U &= \frac{u}{u_c} & V &= \frac{v}{v_c} & \Phi &= \frac{\phi}{\phi_c} \\ X &= \frac{x}{x_c} & Y &= \frac{y}{y_c} & \tau &= \frac{t}{t_c} \end{aligned} \quad (\text{C.4})$$

et on fait les choix suivants pour les grandeurs caractéristiques

$$u_c = v_c = (\nu g_y)^{1/3} \quad ; \quad \phi_c = (\nu g_y)^{2/3} \quad ; \quad x_c = y_c = \frac{\nu^{2/3}}{g_y^{1/3}} \quad ; \quad t_c = \frac{\nu^{1/3}}{g_y^{2/3}}. \quad (\text{C.5})$$

Ceci permet d'écrire les équations de Navier-Stokes sans dimension

$$\frac{\partial U}{\partial \tau} + \frac{\partial U^2}{\partial X} + \frac{\partial UV}{\partial Y} + \frac{\partial \Phi}{\partial X} = \frac{\partial^2 U}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 U}{\partial Y^2}, \quad (\text{C.6})$$

$$\frac{\partial V}{\partial \tau} + \frac{\partial V^2}{\partial Y} + \frac{\partial UV}{\partial X} + \frac{\partial \Phi}{\partial Y} = \frac{\partial^2 V}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 V}{\partial Y^2} - 1, \quad (\text{C.7})$$

$$\frac{\partial U}{\partial X} + \frac{\partial V}{\partial Y} = 0. \quad (\text{C.8})$$

La seule force externe que l'on souhaite appliquer est la gravité, verticale et constante,  $g_x = 0$ . De plus, on constate que le problème ne dépend plus des paramètres  $\nu$  et  $g_y$ . Finalement, ces deux paramètres sont contraints à des valeurs positives et non nulles afin d'obtenir des solutions réelles et finies pour les grandeurs avec des dimensions.

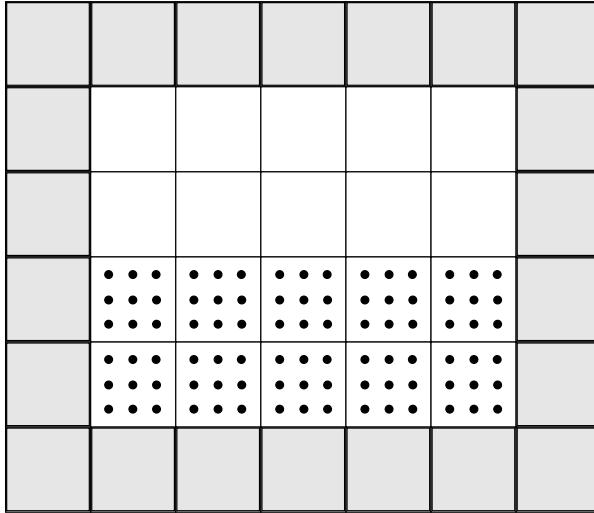


FIGURE C.1: Schéma d'une grille utilisée avec la méthode MAC. Les cellules des murs rigides sont en gris et les points sont des marqueurs. Les cellules contenant du fluide sont blanches et contiennent au moins un marqueur. Les cellules blanches et sans marqueur sont vides.

## C.2 Domaine libre et méthode Marker and Cell

La méthode MAC s'appuie également sur la discrétisation des équations et d'un schéma de différences finies. La particularité est l'utilisation d'un ensemble de marqueurs qui sont distribués dans le fluide au début de la simulation et qui suivent les mouvements internes du fluide. Ceux-ci permettent de suivre la position du fluide et surtout la position d'une éventuelle surface libre. Une surface libre n'est pas contrainte à un bord rigide, contrairement à une interface entre un fluide et un mur solide par exemple, qui ne peut bouger dans l'espace. C'est donc plutôt l'interface entre un fluide et l'environnement qui est susceptible de varier comme les vagues à la plage par exemple.

Un exemple de géométrie simplifiée est montré à la figure C.1. Chaque carré correspond à une cellule, le plus petit volume possible de l'espace discrétisé, dont trois types peuvent exister. D'abord, les cellules blanches contenant au moins un marqueur représenté par un point noir. Ce sont les cellules qui contiennent du fluide. Il y a les cellules blanches qui ne contiennent aucun marqueur. Ce sont les cellules considérées comme vides mais qui pourront éventuellement contenir du fluide. Puis, les cellules grises sont placées tout le tour du domaine et représentent des murs rigides dans lesquels, il ne peut y avoir de fluide.

On utilise une grille dite décalée, comme au chapitre 3, où les valeurs de vitesse  $U$  et  $V$ , ainsi que la pression  $\Phi$  ne sont pas définies au même point dans une cellule. La pression est définie au centre de la cellule et les vitesses aux frontières entre les cellules, ce qui permet d'augmenter la stabilité du calcul numérique. La figure C.2 montre une de ces cellules.

Finalement, chaque marqueur est défini par une paire de coordonnées  $(X,Y)$  qui n'est pas

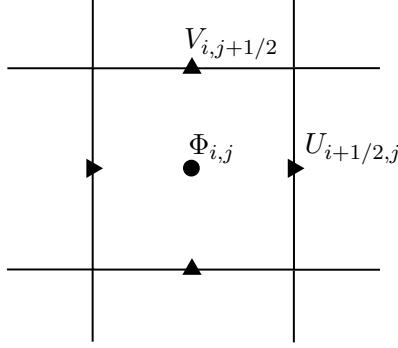


FIGURE C.2: Cellule bidimensionnelle de la grille décalée. La pression  $\Phi$  est définie au centre, la vitesse verticale  $V$  sur les côtés horizontaux et la vitesse horizontale sur les côtés verticaux.

soumise à la discréétisation de l'espace. Ils sont libres de circuler de façon continue à l'intérieur des cellules. Avant de débuter la première itération temporelle, on dépose un certain nombre de marqueurs par cellule qu'on souhaite pleine à  $\tau = 0$ . On reviendra sur ces marqueurs après le premier pas temporel des champs de vitesses.

**Première itération.** Une fois la grille créée avec des pas spatiaux de  $\delta X$  et  $\delta Y$ , on utilise un schéma de différences finies explicite afin de faire un premier pas temporel de durée  $\delta\tau$ . Les indices  $i$  et  $j$  indiquent la position en  $X$  et  $Y$  respectivement en nombre de cellules dans la grille et l'indice  $n$  indique à quelle itération temporelle en est le calcul.

$$\begin{aligned} \frac{U_{i+1/2,j}^* - U_{i+1/2,j}^n}{\delta\tau} &= \\ &\frac{(U_{i,j}^n)^2 - (U_{i+1,j}^n)^2}{\delta X} + \frac{(U_{i+1/2,j-1/2}^n)(V_{i+1/2,j-1/2}^n) - (U_{i+1/2,j+1/2}^n)(V_{i+1/2,j+1/2}^n)}{\delta Y} \\ &+ \frac{U_{i+3/2,j}^n + U_{i-1/2,j}^n - 2U_{i+1/2,j}^n}{\delta X^2} + \frac{U_{i+1/2,j+1}^n + U_{i+1/2,j-1}^n - 2U_{i+1/2,j}^n}{\delta Y^2} + \frac{\Phi_{i,j}^n - \Phi_{i+1,j}^n}{\delta X}, \end{aligned} \quad (\text{C.9})$$

$$\begin{aligned} \frac{V_{i,j+1/2}^* - V_{i,j+1/2}^n}{\delta\tau} &= \\ &\frac{(V_{i,j}^n)^2 - (V_{i,j+1}^n)^2}{\delta Y} + \frac{(U_{i-1/2,j+1/2}^n)(V_{i-1/2,j+1/2}^n) - (U_{i+1/2,j+1/2}^n)(V_{i+1/2,j+1/2}^n)}{\delta X} \\ &+ \frac{V_{i+1,j+1/2}^n + V_{i-1,j+1/2}^n - 2V_{i,j+1/2}^n}{\delta X^2} + \frac{V_{i,j+3/2}^n + V_{i,j-1/2}^n - 2V_{i,j+1/2}^n}{\delta Y^2} + \frac{\Phi_{i,j}^n - \Phi_{i,j+1}^n}{\delta Y} - 1 \end{aligned} \quad (\text{C.10})$$

Ce premier pas n'amène pas directement à  $U^{n+1}$  et  $V^{n+1}$ , car on ne connaît pas encore le champ de pression nécessaire afin de faire respecter l'incompressibilité du fluide et on peut le supposer nul pour l'instant. C'est pourquoi on passe par les valeurs intermédiaires  $U^*$  et  $V^*$  qui serviront à déterminer le véritable champ de pression. Le champ de vitesses résultant des

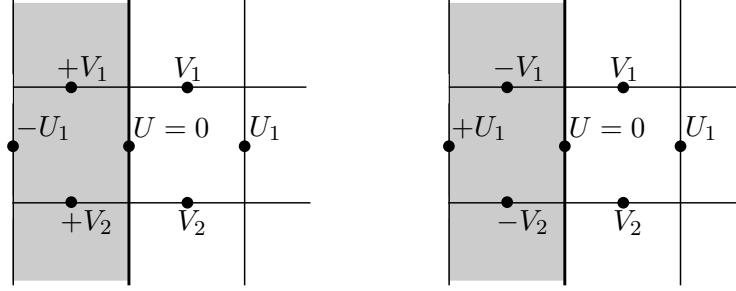


FIGURE C.3: Vitesses imposées aux quatre côtés des cellules des frontières rigides (grises). Le cas avec glissement est à gauche et le cas sans glissement est à droite.

deux composantes  $U^*$  et  $V^*$  qu'on notera simplement  $\vec{V}^*$  ne diffère de la solution réelle  $\vec{V}^{n+1}$  que par le terme de pression. On peut alors écrire

$$\frac{\vec{V}^{n+1} - \vec{V}^*}{\delta\tau} + \nabla\Phi^n = 0. \quad (\text{C.11})$$

En appliquant l'opérateur  $(\nabla \cdot)$  avec la contrainte d'incompressibilité  $\nabla \cdot \vec{V}^{n+1} = 0$ , on obtient

$$\nabla^2\Phi^n = \frac{\nabla \cdot \vec{V}^*}{\delta\tau}. \quad (\text{C.12})$$

C'est l'équation de Poisson à résoudre afin d'obtenir  $\Phi^n$  que l'on insère dans l'équation C.11 afin d'obtenir  $\vec{V}^{n+1}$ .

**Conditions frontières rigides.** Il y a deux types de conditions frontières pour les bords rigides. D'abord, le cas avec glissement (*free-slip*) qui peut être utilisé comme plan de symétrie ou comme un mur sur lequel un liquide ne *colle* pas (hydrophobe dans le cas de l'eau), puis le cas sans glissement (*no-slip*). Dans les deux cas, il faut calculer comment les corrections sur les vitesses affectent la pression dans les cellules des murs rigides afin que la divergence y reste nulle.

Dans le cas avec glissement, tel que représenté à la figure C.3 (gauche), les vitesses tangentielles sont inchangées et les vitesses normales sont opposées. En appliquant cela dans les équations C.9 et C.10, on trouve les conditions frontières pour la pression

$$\Phi_v = \Phi_1 \quad ; \quad \Phi_h = \Phi_1 \pm \delta Y, \quad (\text{C.13})$$

où  $\Phi_v$  est la pression dans le cas d'un mur vertical,  $\Phi_h$  est la pression dans le cas d'un mur horizontal et  $\Phi_1$  est la pression dans la cellule adjacente au mur. Dans le deuxième cas, on choisit le signe positif si le fluide est sous le mur et le signe négatif si le fluide est au-dessus du mur.

Le cas d'un mur sans glissement est représenté à la figure C.3 (droite). Cette fois, les vitesses tangentielles s'inversent et les vitesses normales sont symétriques. Similairement au cas

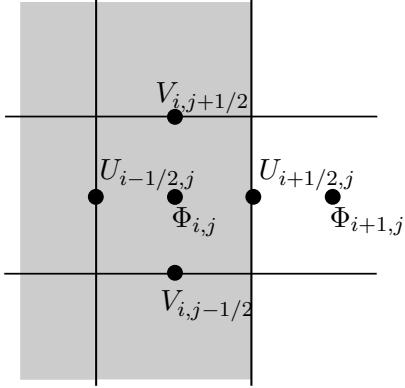


FIGURE C.4: Exemple de frontière libre. Les cellules grises sont pleines et les blanches sont vides. Une correction est appliquée à  $U_{i+1/2,j}$  et à  $\Phi_{i+1,j}$  dans ce cas précis. Les autres cas peuvent impliquer une cellule vide voisine à 1, 3 ou 4 cellules pleines.

précédent, on trouve les conditions frontières pour la pression

$$\Phi_v = \Phi_1 \pm \frac{2U_1}{\delta X} \quad ; \quad \Phi_h = \Phi_1 \pm \delta Y \pm \frac{2V_1}{\delta Y}, \quad (\text{C.14})$$

où on choisit le signe positif si le fluide est à gauche du mur ou sous le mur. Pour un fluide à droite ou au-dessus du mur, on choisit plutôt le signe négatif.

**Condition frontière libre.** Il reste le cas de la frontière libre, ou plutôt l'intersection entre le fluide et le vide. La condition frontière s'applique aux vitesses définies sur chaque côté de cellule commun à du fluide et du vide. Elle s'applique aussi sur la pression des cellules vides voisines à au moins une cellule de fluide. Pour les vitesses, on trouve ces corrections à l'aide de la condition d'incompressibilité

$$\frac{U_{i+1/2,j} - U_{i-1/2,j}}{\delta X} + \frac{V_{i,j+1/2} - V_{i,j-1/2}}{\delta Y} = 0, \quad (\text{C.15})$$

dont on isole la composante de vitesse qui se trouve à l'intersection entre la cellule pleine et la cellule vide. Dans le cas particulier de la figure C.4, la cellule vide est voisine d'une seule cellule de fluide à sa gauche, il faut isoler  $U_{i+1/2,j}$  avec

$$U_{i+1/2,j} = U_{i-1/2,j} + \frac{\delta X}{\delta Y} (V_{i,j-1/2} - V_{i,j+1/2}). \quad (\text{C.16})$$

C'est la correction à appliquer sur la vitesse à la surface afin de respecter la divergence nulle. La différence entre les deux côtés de cette expression nous donne alors le numérateur  $\vec{V}^{n+1} - \vec{V}^*$  de l'équation C.11, ce qui permet d'obtenir

$$\frac{U_{i+1/2,j} - U_{i-1/2,j} + \frac{\delta X}{\delta Y} (V_{i,j+1/2} - V_{i,j-1/2})}{\delta \tau} + \frac{\Phi_{i+1,j} - \Phi_{i,j}}{\delta X} = 0. \quad (\text{C.17})$$

Finalement, on isole  $\Phi_{i+1,j}$ . C'est la pression au centre de la cellule adjacente au fluide, la condition frontière de la pression

$$\Phi_{i+1,j} = \Phi_{i,j} + \frac{\delta X}{\delta \tau} \left( U_{i+1/2,j} - U_{i-1/2,j} + \frac{\delta Y}{\delta X} (V_{i,j+1/2} - V_{i,j-1/2}) \right). \quad (\text{C.18})$$

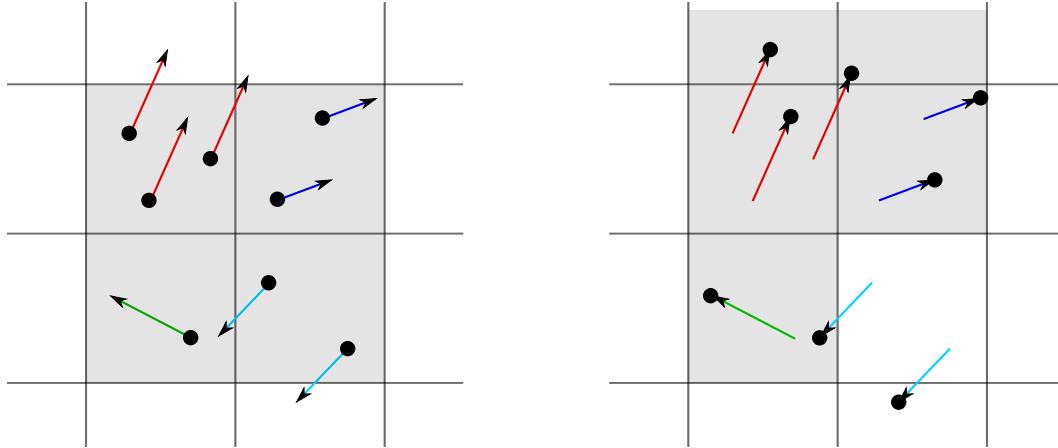


FIGURE C.5: Déplacement des marqueurs. Chaque marqueur d'une même cellule subit le même déplacement. Les cellules grises sont considérées pleines et les blanches sont vides.

Les cas des cellules vides ayant trois cellules pleines voisines se traitent similairement. Dans tous les autres cas, on traite les directions  $x$  et  $y$  séparément et on trouve toujours la même condition frontière. Si une cellule vide de pression  $\Phi_v$  est adjacente à une seule cellule pleine de pression  $\Phi_p$ , alors

$$\Phi_v = \Phi_p. \quad (\text{C.19})$$

Connaissant maintenant toutes les conditions frontières de la pression (libres et rigides), on peut résoudre l'équation de Poisson par la méthode itérative de son choix (Gauss-Seidel [64] dans le cas présent) et corriger les champs de vitesses pour tout le fluide avec (C.11). Le premier pas en temps est presque finalisé.

**Déplacement des marqueurs.** La dernière étape est de faire bouger les marqueurs dont un certain nombre a été placé dans chaque cellule initialement pleine. Leurs coordonnées sont continues, mais les champs de vitesses sont discrets, alors chaque marqueur d'une même cellule subira le même déplacement, même s'ils ne sont pas exactement au même endroit. Un exemple est montré à la figure C.5.

La vitesse au sein d'une cellule est déterminée par

$$U_{i,j} = \frac{U_{i-1/2,j} + U_{i+1/2,j}}{2}, \quad (\text{C.20})$$

$$V_{i,j} = \frac{V_{i,j-1/2} + V_{i,j+1/2}}{2}. \quad (\text{C.21})$$

Le déplacement en  $X$  est donné par  $\delta\tau(U_{i,j})$  et le déplacement en  $Y$  par  $\delta\tau(V_{i,j})$ .

**Couplage avec l'équation de la chaleur.** Le couplage avec l'équation de diffusion est très simple à effectuer grâce à l'utilisation des marqueurs. Avant le déplacement des marqueurs, chaque cellule se voit imposer une température qui est inscrite dans chacun des marqueurs

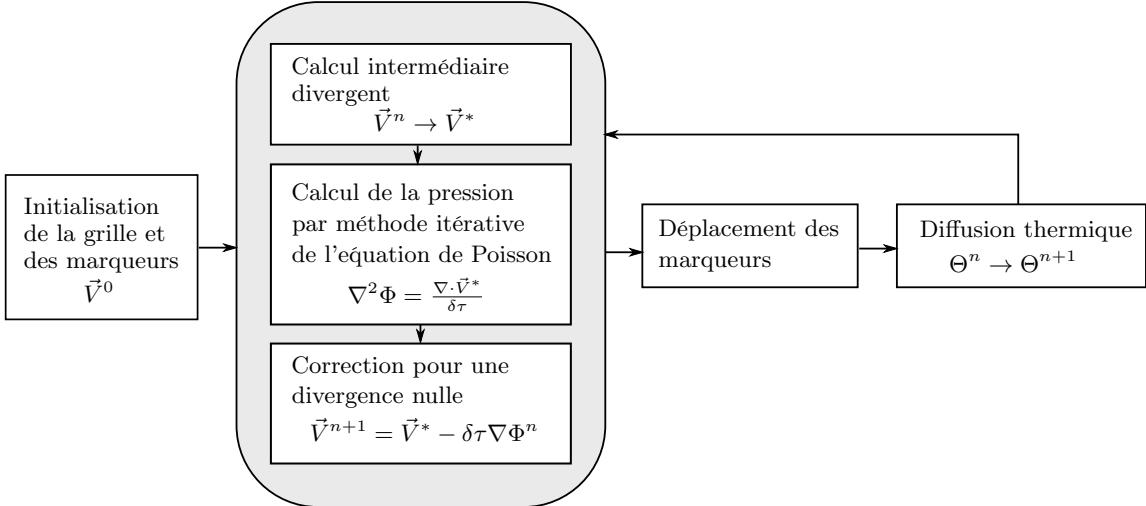


FIGURE C.6: Résumé des étapes de la méthode MAC.

qu'elle contient. Après le déplacement des marqueurs en fonction des mouvements du fluide, chaque cellule reçoit une nouvelle valeur de température qui correspond à la moyenne des températures des marqueurs qu'elle contient. La diffusion thermique est prise en compte avec l'équation de la chaleur homogène cartésienne

$$\frac{1}{\alpha} \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2}, \quad (\text{C.22})$$

avec la température  $T$  en Kelvins, les distances  $x$  et  $y$  en mètres, le temps  $t$  en secondes et la diffusivité thermique  $\alpha$  en  $m^2/s$ . En insérant les grandeurs caractéristiques choisies en C.5, on obtient

$$\beta \frac{\partial \Theta}{\partial \tau} = \frac{\partial^2 \Theta}{\partial X^2} + \frac{\partial^2 \Theta}{\partial Y^2}, \quad (\text{C.23})$$

avec  $\Theta = T/T_c$  et  $\beta = \nu/\alpha$ . La température caractéristique  $T_c$  choisie est la température maximale de la situation initiale. Ainsi, le domaine de température s'étendra de 0 à 1 tout au long de la simulation. On applique une condition d'isolation thermique aux frontières rigides et libres, soit une première dérivée nulle imposée par  $\Theta_{\text{Exterieur}} = \Theta_{\text{Interieur}}$ .

Le schéma de différences finies utilisé est

$$\Theta_{i,j}^{n+1} = \Theta_{i,j}^n + \frac{\delta \tau}{\beta} \left[ \frac{\Theta_{i-1,j}^n + \Theta_{i+1,j}^n - 2\Theta_{i,j}^n}{\delta X^2} + \frac{\Theta_{i,j-1}^n + \Theta_{i,j+1}^n - 2\Theta_{i,j}^n}{\delta Y^2} \right]. \quad (\text{C.24})$$

**Résultats.** Une fois tous ces éléments mis en place, on teste le modèle, résumé à la figure C.6, avec la situation suivante : une goutte de température  $\Theta = 1$  et de volume  $V_g = 1$  est placée au-dessus d'un bassin de température  $\Theta = 0.546$  et de volume  $V_b = 7.5$  (pour un volume total initial de  $V_t = 8.5$ ). La frontière de gauche est avec décrise glissement et les trois autres sont sans glissement. On choisit  $\beta = 1$  et on applique une force gravitationnelle  $g_y$  afin

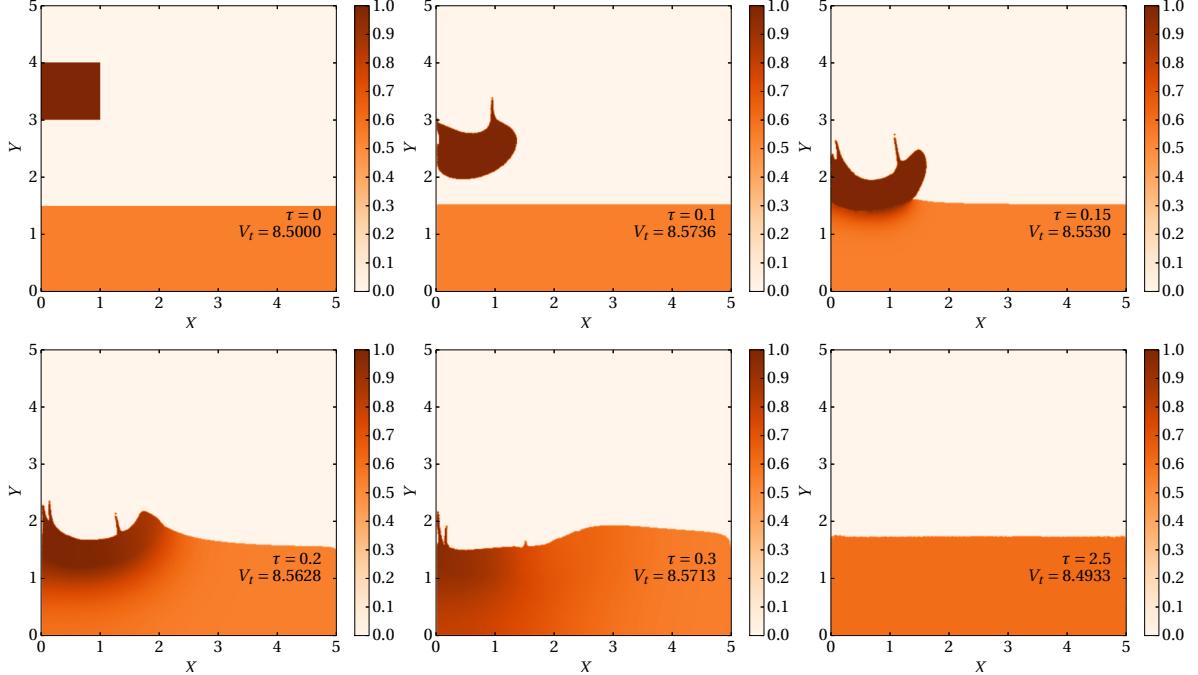


FIGURE C.7: Goutte tombant sous l'effet de la gravité dans un bassin. La discrétisation est  $\delta X = \delta Y = 1/80$  et  $\delta\tau = 10^{-5}$ .

d'observer la goutte qui tombe dans le bassin, la surface du bassin qui se modifie et la diffusion de la température. Le résultat est présenté à la figure C.7.

Le volume total du fluide commence à  $V_t = 8.5$ . En comptant le nombre de cellules pleines, on observe une augmentation rapide du volume dès le début de la simulation, puis une lente diminution. C'est dû au fait qu'une cellule contenant un seul marqueur est considérée comme pleine. Il y a donc une sur-évaluation du volume dès que les marqueurs commencent à passer d'une cellule initiale à une autre, i. e. très tôt dans la simulation. Le nombre de cellules moyen  $N$  de cette sur-évaluation vaut [63]

$$N = \frac{P}{\pi} \left( \frac{\delta X + \delta Y}{\delta X \delta Y} \right), \quad (\text{C.25})$$

où  $P$  dénote le périmètre du fluide. Si on fixe ce périmètre initialement à la valeur 8 à la situation initiale (les trois côtés libres de la goutte mesurent chacun 1 et le dessus du bassin 5), on trouve une sur-évaluation moyenne du volume de 0.064 environ. On s'attend alors à observer un volume total de 8.564 avec des fluctuations autour de cette valeur. L'évolution du volume du fluide est tracée à la figure C.8.

C'est environ ce qui est observé au début de la simulation. Vers  $\tau = 1$ , le volume total commence à diminuer de façon quasi-monotone. Deux effets contribuent à cette diminution, dont la réduction du périmètre une fois la goutte intégrée au bassin. Par contre, la monotonie de cette décroissance, même après que le bassin se soit stabilisé, indique plutôt qu'elle est

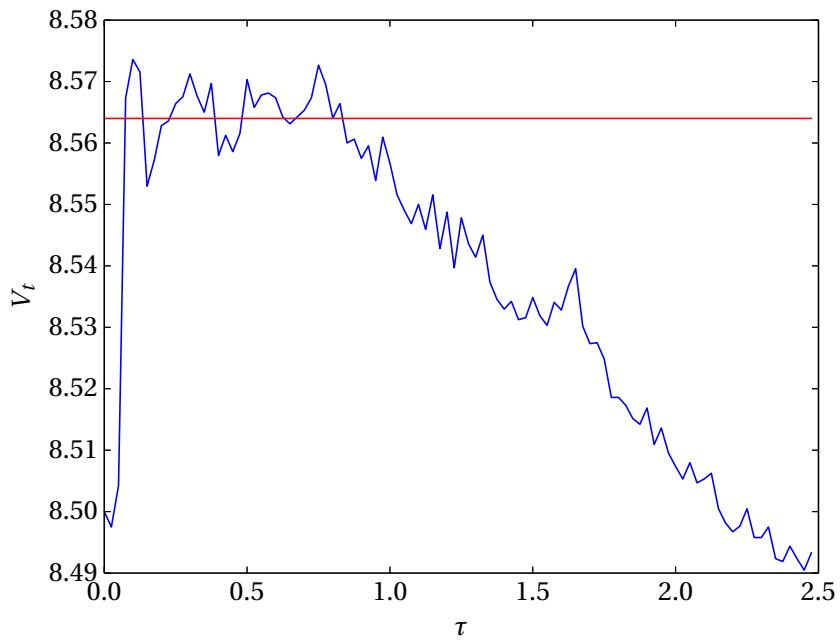


FIGURE C.8: Volume total du fluide lors de la simulation de la figure C.7. La ligne rouge indique le volume attendu si on tient compte de la sur-évaluation (voir (C.25)).

principalement due à une légère compressibilité du fluide. Celle-ci provient du nombre fini d’itérations effectuées lors du calcul de la pression.

# Bibliographie

- [1] M. Birnbaum. Semiconductor surface damage produced by ruby lasers. *Journal Applied Physics*, 36 :3688–3689, 1965.
- [2] Q. Wu, Y. Ma, R.n Fang, Y. Liao, Q. Yu, X. Chen, and K. Wang. Femtosecond laser-induced periodic surface structure on diamond film. *Applied Physics Letters*, 82 :1703–1705, 2003.
- [3] S. Höhm, A. Rosenfeld, J. Krüger, and J. Bonse. Femtosecond laser-induced periodic surface structures on silica. *Journal Applied Physics*, 112 :014901, 2012.
- [4] P. E. Dyer, R. J. Farley, R. Giedl, and D. M. Karnakis. Excimer laser ablation of polymers and glasses for grating fabrication. *Applied Surface Science*, 96–98 :537 – 549, 1996.
- [5] A. M. Ozkan, A. P. Malshe, T. A. Railkar, W. D. Brown, M. D. Shirk, and P. A. Molian. Femtosecond laser-induced periodic structure writing on diamond crystals and microclusters. *Applied Physics Letters*, 75, 1999.
- [6] M. Bolle, S. Lazare, M. Le Blanc, and A. Wilmes. Submicron periodic structures produced on polymer surfaces with polarized excimer laser ultraviolet radiation. *Applied Physics Letters*, 60 :674–676, 1992.
- [7] S. Baudach, J. Bonse, and W. Kautek. Ablation experiments on polyimide with femtosecond laser pulses. *Applied Physics A*, 69 :S395–S398, 1999.
- [8] J. F. Young, J. S. Preston, H. M. Van Driel, and J. E. Sipe. Laser-induced periodic surface structure. ii. experiments on ge, si, al, and brass. *Physical Review B*, 27 :1155, 1983.
- [9] H. M. van Driel, J. E. Sipe, and J. F. Young. Laser-induced periodic surface structure on solids : a universal phenomenon. *Physical Review Letters*, 49 :1955–1958, 1982.
- [10] S. H. Messaddeq, J.-L. Déziel, A. Dumont, M. El-Amraoui, A. Saliminia, R. Vallée, and Y. Messaddeq. Formation of crossed laser-induced periodic surface structures on chalcogenide glass using fs-laser. in preparation.

- [11] B. Dusser, Z. Sagan, H. Soder, N. Faure, J. P. Colombier, M. Jourlin, and E. Audouard. Controlled nanostructures formation by ultra fast laser pulses for color marking. *Optics Express*, 18 :2913–2924, 2010.
- [12] C. H. Crouch, J. E. Carey, J. M. Warrender, M. J. Aziz, E. Mazur, and F. Y. Génin. Comparison of structure and properties of femtosecond and nanosecond laser-structured silicon. *Applied Physics Letters*, 84 :1850–1852, 2004.
- [13] T. Baldacchini, J. E. Carey, M. Zhou, and E. Mazur. Superhydrophobic surfaces prepared by microstructuring of silicon using a femtosecond laser. *Langmuir*, 22 :4917–4919, 2006.
- [14] R. Taylor, C. Hnatovsky, and E. Simova. Applications of femtosecond laser induced self-organized planar nanocracks inside fused silica glass. *Laser & Photonics Reviews*, 2(1-2) :26–46, 2008.
- [15] J. E. Sipe, Jeff F. Young, J. S. Preston, and H. M. van Driel. Laser-induced periodic surface structure. i. theory. *Physical Review B*, 27 :1141–1154, 1983.
- [16] J. Bonse, A. Rosenfeld, and J. Krüger. On the role of surface plasmon polaritons in the formation of laser-induced periodic surface structures upon irradiation of silicon by femtosecond-laser pulses. *Journal Applied Physics*, 106 :104910, 2009.
- [17] M. Couillard, A. Borowiec, H. K. Haugen, J. S. Preston, E. M. Griswold, and G. A. Botton. Subsurface modifications in indium phosphide induced by single and multiple femtosecond laser pulses : A study on the formation of periodic ripples. *Journal Applied Physics*, 101 :033519, 2007.
- [18] C. Lu, D. Recht, and C. Arnold. Generalized model for photoinduced surface structure in amorphous thin films. *Physical Review Letters*, 111 :105503, 2013.
- [19] M. Yang, Q. Wu, Z. Chen, B. Zhang, B. Tang, J. Yao, I. Drevensek-Olenik, and J. Xu. Generation and erasure of femtosecond laser-induced periodic surface structures on nanoparticle-covered silicon by a single laser pulse. *Optics Letters*, 39 :343–346, 2014.
- [20] K. Yee. Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell's equations in isotropic media. *IEEE Transactions on Antennas and Propagation*, 14 :302–307, 1966.
- [21] A. Tafove and S. C. Hagness. *Computational Electrodynamics : The Finite-Difference Time-Domain Method*. Artech House, Incorporated, 2005.
- [22] J. Z. P. Skolski, G. R. B. E. Römer, J. V. Obona, V. Ocelik, A. J. Huis in't Veld, and J. Th. M. De Hosson. Laser-induced periodic surface structures : Fingerprints of light localization. *Physical Review B*, 85 :075320, 2012.

- [23] J.-L. Déziel, J. Dumont, D. Gagnon, L. J. Dubé, S. H. Messaddeq, and Y. Messaddeq. Toward the formation of crossed laser-induced periodic surface structures. *Journal of Optics*, 17 :075405, 2015.
- [24] D. W. Hahn and M. N. Özişik. *Heat Conduction*. Wiley, 2012.
- [25] I. S. Gradshteyn and I. M. Ryzhik. *Table of Integrals, Series and Products*. Alan Jeffrey and Daniel Zwillinger, 2007.
- [26] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin. *Solid State Physics*. Saunders College, Philadelphia, 1976.
- [27] K. Sokolowski-Tinten and D. von der Linde. Generation of dense electron-hole plasmas in silicon. *Physical Review B*, 61 :2643–2650, 2000.
- [28] E. G. Gamaly, A. V. Rode, B. Luther-Davies, and V. T. Tikhonchuk. Ablation of solids by femtosecond lasers : Ablation mechanism and ablation thresholds for metals and dielectrics. *Physics of Plasmas*, 9 :949–957, 2002.
- [29] N. Yasumaru, K. Miyazaki, and J. Kiuchi. Femtosecond-laser-induced nanostructure formed on hard thin films of tin and dlc. *Applied Physics A*, 76 :983–985, 2003.
- [30] J. Bonse, S. Höhm, A. Rosenfeld, and J. Krüger. Sub-100-nm laser-induced periodic surface structures upon irradiation of titanium by Ti : sapphire femtosecond laser pulses in air. *Applied Physics A*, 110 :547–551, 2013.
- [31] A. Borowiec and H. K. Haugen. Subwavelength ripple formation on the surfaces of compound semiconductors irradiated with femtosecond laser pulses. *Applied Physics Letters*, 82 :4462–4464, 2003.
- [32] E. M. Hsu, T. H. R. Crawford, H. F. Tiedje, and H. K. Haugen. Periodic surface structures on gallium phosphide after irradiation with 150 fs-7 ns laser pulses at 800 nm. *Applied Physics Letters*, 91 :111102, 2007.
- [33] J. Bonse, H. Sturm, D. Schmidt, and W. Kautek. Chemical, morphological and accumulation phenomena in ultrashort-pulse laser ablation of tin in air. *Applied Physics A*, 71 :657–665, 2000.
- [34] D. Haneman and R. J. Nemanich. Surface topography of laser annealed silicon. *Solid State Communications*, 43 :203 – 206, 1982.
- [35] J. Bonse, S. Baudach, J. Krüger, W. Kautek, and M. Lenzner. Femtosecond laser ablation of silicon—modification thresholds and morphology. *Applied Physics A*, 74 :19–25, 2002.

- [36] F. Costache, S. Kouteva-Argirova, and J. Reif. Sub-damage-threshold femtosecond laser ablation from crystalline Si : surface nanostructures and phase transformation. *Applied Physics A*, 79 :1429–1432, 2004.
- [37] J. Bonse and J. Krüger. Pulse number dependence of laser-induced periodic surface structures for femtosecond laser irradiation of silicon. *Journal Applied Physics*, 108 :034903, 2010.
- [38] J. Bonse, M. Munz, and H. Sturm. Structure formation on the surface of indium phosphide irradiated by femtosecond laser pulses. *Journal Applied Physics*, 97 :013538, 2005.
- [39] D. Ashkenasi, A. Rosenfeld, H. Varel, M. Wähmer, and E. E. B. Campbell. Laser processing of sapphire with picosecond and sub-picosecond pulses. *Applied Surface Science*, 120 :65–80, 1997.
- [40] D. Dufft, A. Rosenfeld, S. K. Das, R. Grunwald, and J. Bonse. Femtosecond laser-induced periodic surface structures revisited : A comparative study on zno. *Journal Applied Physics*, 105 :034908, 2009.
- [41] A. J. Huis in't Veld and J. van der Veer. Initiation of femtosecond laser machined ripples in steel observed by scanning helium ion microscopy (SHIM). *Journal of Laser Micro/Nanoengineering*, 5 :28–34, 2010.
- [42] M. Rohloff, S. K. Das, S. Höhm, R. Grunwald, A. Rosenfeld, J. Krüger, and J. Bonse. Formation of laser-induced periodic surface structures on fused silica upon multiple cross-polarized double-femtosecond-laser-pulse irradiation sequences. *Journal of Applied Physics*, 110 :014910, 2011.
- [43] T. Q. Jia, H. X. Chen, M. Huang, F. L. Zhao, J. R. Qiu, R. X. Li, Z. Z. Xu, X. K. He, J. Zhang, and H. Kuroda. Formation of nanogratings on the surface of a znse crystal irradiated by femtosecond laser pulses. *Physical Review B*, 72 :125429, 2005.
- [44] A. Rosenfeld, M. Rohloff, S. Höhm, J. Krüger, and J. Bonse. Formation of laser-induced periodic surface structures on fused silica upon multiple parallel polarized double-femtosecond-laser-pulse irradiation sequences. *Applied Surface Science*, 258 :9233–9236, 2012.
- [45] J. Bonse, J. Krüger, S. Höhm, and A. Rosenfeld. Femtosecond laser-induced periodic surface structures. *Journal Laser Applications*, 24 :042006, 2012.
- [46] N. Yasumaru, K. Miyazaki, and J. Kiuchi. Fluence dependence of femtosecond-laser-induced nanostructure formed on TiN and CrN. *Applied Physics A*, 81 :933–937, 2005.

- [47] S. Sakabe, M. Hashida, S. Tokita, S. Namba, and K. Okamuro. Mechanism for self-formation of periodic grating structures on a metal surface by a femtosecond laser pulse. *Physical Review B*, 79 :033409, 2009.
- [48] R. Wagner and J. Gottmann. Sub-wavelength ripple formation on various materials induced by tightly focused femtosecond laser radiation. 59 :333, 2007.
- [49] Q. Sun, F. Liang, R. Vallée, and S. L. Chin. Nanograting formation on the surface of silica glass by scanning focused femtosecond laser pulses. *Optics letters*, 33 :2713–2715, 2008.
- [50] S. K. Das, D. Dufft, A. Rosenfeld, J. Bonse, M. Bock, and R. Grunwald. Femtosecond-laser-induced quasiperiodic nanostructures on TiO<sub>2</sub> surfaces. *Journal of Applied Physics*, 105 :084912, 2009.
- [51] A. F. Oskooi, D. Roundy, M. Ibanescu, P. Bermel, J. D. Joannopoulos, and S. G. Johnson. Meep : A flexible free-software package for electromagnetic simulations by the FDTD method. *Computer Physics Communications*, 181 :687 – 702, 2010.
- [52] S. G. Johnson. *Notes on the UPML implementation in Meep*. 2010. <http://ab-initio.mit.edu/meep/pml-meep.pdf>.
- [53] J. Z. P. Skolski, G. R. B. E. Römer, J. Vincenc Obona, and A. J. Huis in't Veld. Modeling laser-induced periodic surface structures : Finite-difference time-domain feedback simulations. *Journal Applied Physics*, 115 :103102, 2014.
- [54] J. Z. P. Skolski. *Modeling laser-induced periodic surface structures*. University of Twente, 2014.
- [55] M. Huang, F. Zhao, Y. Cheng, N. Xu, and Z. Xu. Origin of laser-induced near-subwavelength ripples : Interference between surface plasmons and incident laser. *ACS Nano*, 3 :4062–4070, 2009.
- [56] J. F. Young, J. E. Sipe, and H. M. van Driel. Regimes of laser-induced periodic surface structure on germanium : radiation remnants and surface plasmons. *Optics Letters*, 8 :431–433, 1983.
- [57] J. E. Sipe, H. M. van Driel, and Jeff F. Young. Surface electrodynamics : radiation fields, surface polaritons, and radiation remnants. *Canadian Journal of Physics*, 63 :104–113, 1985.
- [58] Y. Bao-Rong, L. Jian-Hong, K. Ling-Hua, and H. Xi-Wei. Numerical studies of s-polarized surface plasmon polaritons at the interface associated with metamaterial. *Chinese Physics Letters*, 27 :115101, 2010.

- [59] K. Tanaka, A. Saitoh, and N. Terakado. Giant photo-expansion in chalcogenide glass. *Journal of Optoelectronics and Advanced Materials*, 8 :2058–2065, 2006.
- [60] V. R. Bhardwaj, E. Simova, P. P. Rajeev, C. Hnatovsky, R. S. Taylor, D. M. Rayner, and P. B. Corkum. Optically produced arrays of planar nanostructures inside fused silica. *Physical Review Letters*, 96 :057404, 2006.
- [61] C. Varin, C. Peltz, T. Brabec, and T. Fennel. Light wave driven electron dynamics in clusters. *Annalen der Physik*, 526(3-4) :135–156, 2014.
- [62] C. Hnatovsky, R. S. Taylor, P. P. Rajeev, E. Simova, V. R. Bhardwaj, D. M. Rayner, and P. B. Corkum. Pulse duration dependence of femtosecond-laser-fabricated nanogratings in fused silica. *Applied Physics Letters*, 87(1) :014104, 2005.
- [63] F. H. Harlow, J. E. Welch, et al. Numerical calculation of time-dependent viscous incompressible flow of fluid with free surface. *Physics of fluids*, 8 :2182, 1965.
- [64] S. Yoon and A. Jameson. Lower-upper Symmetric-Gauss-Seidel method for the Euler and Navier-Stokes equations. *American Institute of Aeronautics and Astronautics Journal*, 26 :1025, 1988.