



REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
MINISTRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

**UNIVERSITE ABOU-BEKR BELKAID - TLEMCCEN**

# MEMOIRE

Présenté à :

FACULTE DES SCIENCES – DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

**MASTER EN PHYSIQUE**

Spécialité : Physique des plasmas

Par :

**Mlle SARI Ahlem**

Sur le thème

---

## **Modélisation du mécanisme d'ionisation des semi-conducteurs et diélectriques par impulsion laser ultracourte**

---

Soutenu publiquement le 08 juin 2023 à Tlemcen devant le jury composé de :

INAL Mokhtar Kemal	Professeur	Université de Tlemcen	Président
BEDRANE Zeyneb	Professeure	Université de Tlemcen	Encadrante
SENOUDI Assia Rachida	MCA	Université de Tlemcen	Examinatrice
ABDELMALEK Ahmed	Docteur	Université de Tlemcen (LPT)	Co-encadrant

*Année Universitaire : 2022 ~ 2023*

*Je dédie ce mémoire à ma mère, ma raison d'être.*

## *Remerciement*

Avant de commencer la présentation de ce mémoire, je profite l'occasion pour remercier du fond du cœur toutes personne qui a contribué de près ou de loin à la réalisation de ce mémoire et pardonnez-moi d'avance si j'oublie de mentionner quelqu'un.

Au début, je voudrais exprimer ma profonde reconnaissance, gratitude et mes sincères remerciements à mon encadrante **Pr.BEDRANE Zeyneb** pour son soutien, sa croyance en moi surtout dans les moments où je perds la foi en mes capacités, sa disponibilité, ses encouragements et ses conseils précieux franchement sans elle ce travail n'aurait jamais pu voir le jour.

Je tiens à remercier également mon co-encadrant **Dr.ABDELMALEK Ahmed** pour son aide, ses suggestions et ses conseils qui m'ont énormément facilité la tâche.

Mes vifs remerciements vont aussi au **Pr.INAL Mokhtar Kemal** pour m'avoir fait l'honneur de présider mon jury de soutenance et je tiens à préciser que sans ce professeur qui représente un des piliers de la physique des plasmas je n'aurais peut-être pas choisi cette filière, mais j'ai eu de la chance d'assister à ses cours, je n'oublie jamais le jour où il a remarqué mes efforts et me voilà une future plasmicienne.

Mes remerciements s'adressent également à **Dr.SENOUDI Assia Rachida** d'avoir accepté d'examiner mon manuscrit et ainsi, je voudrais exprimer toute ma gratitude d'avoir cru en moi et de m'encourager, de donner le meilleur de moi même vos paroles sont gravées dans ma tête *si on essaye et on insiste, on obtient le bon résultat* et chaque fois que j'aurais affaire avec un programme d'informatique mes pensées vont converger vers vous.

Enfin, je tiens à remercier les membres de ma famille pour leur confiance sans faille en moi, j'espère que je serai à la hauteur de vos espérances, surtout mes parents, je les remercie pour leur présence quotidienne et leur encouragement et je n'oublie pas de remercier mes camarades en particulier **B.ZERIFI** pour les heures de discussion et de partage et **S.BENSAFI** pour son aide et sa présence.

# Table des matières

<b>1</b>	<b>Généralités sur l'interaction laser-matériaux.</b>	<b>11</b>
1.1	Introduction . . . . .	11
1.2	Définition du laser . . . . .	12
1.3	Principe de fonctionnement des lasers . . . . .	12
1.4	Types de lasers . . . . .	12
1.4.1	<i>Laser pulsé ou à 3 niveaux</i> . . . . .	13
1.4.2	<i>Laser continu ou à 4 niveaux</i> . . . . .	13
1.5	Interaction laser-matériau pour les différents régimes impulsionnels . . . . .	14
1.5.1	<i>Régime nanoseconde</i> . . . . .	15
1.5.2	<i>Régime picoseconde</i> . . . . .	16
1.5.3	<i>Régime femtoseconde</i> . . . . .	16
1.6	Processus d'interaction laser <i>fs</i> -matériau . . . . .	17
1.6.1	<i>Processus fondamental</i> . . . . .	17
1.6.2	<i>Processus secondaires</i> . . . . .	17
1.7	Mécanismes fondamentaux d'ionisation par une impulsion laser ultracourte . . . . .	19
1.7.1	<i>Photo-ionisation</i> . . . . .	19
1.7.2	<i>Ionisation par avalanche (AI)</i> . . . . .	21

1.8	Conclusion . . . . .	22
<b>2</b>	<b>Ionisation d'un diélectrique par une impulsion laser ultra-</b>	
	<b>courte.</b>	<b>23</b>
2.1	Introduction . . . . .	23
2.2	Interaction laser <i>fs</i> -diélectrique . . . . .	24
2.3	Caractéristiques du laser incident . . . . .	26
	2.3.1 <i>L'intensité du laser</i> . . . . .	26
	2.3.2 <i>L'irradiance maximale</i> . . . . .	26
	2.3.3 <i>L'énergie de l'impulsion laser</i> . . . . .	27
2.4	Caractéristiques du matériau . . . . .	27
	2.4.1 <i>La fonction diélectrique</i> . . . . .	28
	2.4.2 <i>La réflectivité</i> . . . . .	28
	2.4.3 <i>Le coefficient d'absorption d'un matériau</i> . . . . .	28
2.5	Modélisation de l'ionisation d'un diélectrique par une impul-	
	sion laser ultracourte suivant la théorie de <i>Keldysh</i> . . . . .	29
	2.5.1 <i>Théorie de Keldysh</i> . . . . .	30
	2.5.2 <i>Paramètre de Keldysh</i> . . . . .	33
2.6	Évolution temporelle de la densité électronique . . . . .	34
2.7	Conclusion . . . . .	35
<b>3</b>	<b>Étude de l'ionisation du diamant par des impulsions laser</b>	
	<b>femtosecondes.</b>	<b>37</b>
3.1	Introduction . . . . .	37
3.2	Description du modèle d'ionisation du diamant par un laser <i>fs</i>	38
	3.2.1 <i>Description du modèle étudié</i> . . . . .	38
	3.2.2 <i>Description physique de l'interaction</i> . . . . .	39
3.3	Étude des deux régimes d'ablation laser . . . . .	40

3.3.1	<i>Comparaison des taux de photo-ionisation entre les deux régimes d'irradiation</i> . . . . .	40
3.3.2	<i>Variation temporelle de la densité des électrons libres pour les deux longueurs d'ondes</i> . . . . .	43
3.4	Mode de l'irradiation multi-pulses ( <i>Brust</i> ) . . . . .	48
3.5	Conclusion . . . . .	49
	<b>Bibliographie</b>	<b>55</b>





# Introduction générale

Les lasers femtosecondes ont révolutionné le domaine du micro-traitement des matériaux en raison de leur capacité à produire des modifications structurales d'ordre du micro/nano-mètre avec une grande précision. De nombreuses nouvelles applications ont été faites avec des matériaux transparents sous irradiation laser femtoseconde telles que : les guides d'ondes photoniques intégrés au laser, les centres de couleur pour les technologies de l'information quantique, le micro-perçage, le dispositif de cellule micro-solaire...etc [1].

L'interaction laser *fs*-matière est un phénomène complexe induit par une combinaison entre plusieurs processus tels que la photo-ionisation, l'ionisation par impact et l'absorption d'énergie laser par le plasma d'électrons libres généré à la surface du matériau irradié. Le but ultime des chercheurs est d'augmenter la précision de la fabrication du produit, par conséquent, pour obtenir un micro-usinage plus précis et de haute qualité, on doit comprendre la physique de l'interaction laser *fs*-matière, à savoir, l'absorption, l'ionisation non-linéaire, le transfert d'énergie et la diffusion thermique [2].

Par ailleurs, il est difficile de comprendre cette interaction sans un modèle théorique, par conséquent, on a utilisé comme modèle la théorie de *Keldysh* basée sur une description semi-classique des électrons. Elle permet de déterminer les taux d'ionisation des processus impliqués lors de l'irradiation d'une surface solide par des impulsions laser ultracourtes [3].

Dans ce travail nous avons choisi comme diélectrique le diamant. Ce matériau exhibe un ensemble de propriétés exceptionnelles, qui le distinguent de manière notable, citons à titre d'exemple sa grande dureté ( $10^4 \text{ kg.mm}^{-2}$ ) qui lui confère une résistance maximale à l'usure. Sa structure de bande, et en particulier la largeur de sa bande interdite (5.5 eV), font de lui le matériau privilégié pour l'élaboration de dispositifs haute puissance (Dispositif pour l'électronique de puissance, Cellule beta-voltaïques, dissipateur thermique) [4]. Si le diamant naturel est souvent associé au luxe, lorsqu'il est produit de manière artificielle, à échelle industrielle est un matériau digne d'intérêt.

Le but de ce travail est d'apporter une démarche qui sert à mieux comprendre l'interaction d'un laser *fs* avec des matériaux transparents, et en particulier le diamant, dans l'objectif de contrôler et améliorer les applications du secteur industriel. Dans ce manuscrit nous portons un intérêt particulier aux processus fondamentaux induits lors de l'irradiation d'une surface solide (un diélectrique) par un laser d'impulsion ultracourte de l'ordre de la femtoseconde et nous nous intéressons principalement aux processus responsables de l'effet thermique qui réduit la qualité d'usinage.

Ce manuscrit est composé de trois chapitres liés à cette thématique. Le premier comporte des généralités sur le laser pulsé et ses différents régimes d'impulsion du nanoseconde jusqu'au femtoseconde ainsi qu'une description des différents processus induits au cours de cette interaction et des mécanismes d'ionisation qui jouent un rôle important dans le micro/nano-usinage. Le second chapitre décrit la variation temporelle de la densité des électrons générés à la surface du matériau transparent irradié par laser en définissant

tous les paramètres qui affectent cette grandeur aussi bien ceux liés aux propriétés du laser que ceux liés aux caractéristiques du matériau. De plus, ce chapitre représente une description approfondie des mécanismes d'ionisation en se basant sur la théorie de *Keldysh*. Le troisième chapitre concerne l'étude de l'ionisation du diamant par des impulsions laser ultracourtes. On y présente l'interaction laser *fs*-diamant pour deux valeurs de longueurs d'ondes qui appartiennent à des domaines spectrales différents, ainsi, on s'intéresse aux mécanismes de transfert thermique à l'intérieur de la cible irradiée. Par ailleurs, on décrit un nouveau traitement haute cadence qui consiste à l'irradiation par un système de rafales qui a pour objectif d'améliorer la précision du mirco/nano-usinage.



# Chapitre 1

## Généralités sur l'interaction laser-matériaux.

### 1.1 Introduction

Le micro-traitement des matériaux par laser est très compliqué en raison de leurs propriétés thermiques et optiques comme les basses températures de fusion et la haute conductivité thermique [5]. Le développement des technologies lasers a permis d'introduire un nouveau régime d'impulsions appelé "**régime femtoseconde**" qui a ouvert plusieurs voies dans le micro-usinage et le micro-traitement des matériaux semi-conducteurs et diélectriques. Le but de ce chapitre, est de comparer les différents régimes impulsions de laser et d'étudier chaque processus physique généré lors de l'interaction laser-matériau. On s'intéressera en particulier aux mécanismes fondamentaux d'ionisation et leurs importance dans ce type d'interaction.

## 1.2 Définition du laser

L'acronyme "**laser**" correspond à l'expression anglaise **Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation** [6]. Il est à la fois un générateur et un amplificateur d'un rayonnement électromagnétique généré par des émissions stimulées qui est unidirectionnel et doublement cohérent (spatialement et temporellement) couvrant un large domaine de longueurs d'onde de l'ultraviolet (UV) à l'infrarouge (IR) passant par le visible [6].

## 1.3 Principe de fonctionnement des lasers

Pour obtenir une transition laser dans un milieu amplificateur il est nécessaire d'avoir un grand nombre d'émissions stimulées [7] ce qui stipule que la population du niveau émetteur doit être supérieure à celle du niveau inférieure ce qui n'est pas compatible avec la statistique de *Boltzmann* qui décrit la répartition atomique entre les niveaux énergétiques. Pour inverser cette distribution de *Boltzmann* il faut procéder à un pompage c'est à dire fournir une énergie au système (électrique, optique ou thermique) qui sera convertie en émissions stimulées [6].

## 1.4 Types de lasers

On distingue deux types de lasers : les lasers à trois niveaux qui fonctionnent en mode impulsionnel et les lasers à quatre niveaux qui fonctionnent en mode continu.

### 1.4.1 *Laser pulsé ou à 3 niveaux*

On considère un système à 3 niveaux  $E_0$ ,  $E_1$  et  $E_2$  (tq  $E_2 > E_1 > E_0$ ) de populations respectives  $N_0$ ,  $N_1$  et  $N_2$ . Par une technique de pompage la population de niveau fondamental  $E_0$  est excitée vers le niveau  $E_2$  de durée de vie courte (par exemple pour un laser à colorant  $\tau_2$  est d'ordre de 1 à 10 nanosecondes) qui se dépeuple rapidement vers le niveau  $E_1$  (la transition  $E_2 \rightarrow E_0$  étant interdite). La raie lasante correspond à la transition du niveau  $E_1$  vers le fondamental  $E_0$ . Comme il est difficile de vider le niveau fondamental (contient la majorité de population) en faveur du niveau excité dans le but d'inverser la population, il faut refaire le cycle de pompage après chaque émission laser, ce laser fonctionne alors en mode **impulsionnel** [6].

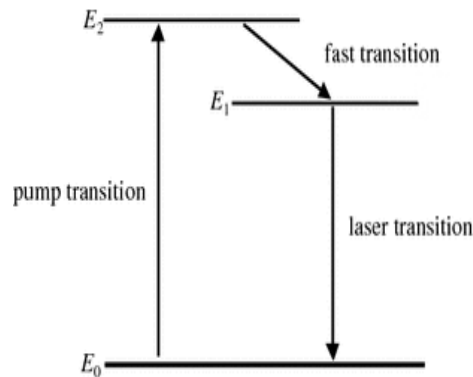


FIGURE 1.1 – Système laser à 3 niveaux [8].

### 1.4.2 *Laser continu ou à 4 niveaux*

On considère un système à 4 niveaux  $E_0$ ,  $E_1$ ,  $E_2$  et  $E_3$  (tq  $E_3 > E_2 > E_1 > E_0$ ) de populations respectives  $N_0$ ,  $N_1$ ,  $N_2$  et  $N_3$ . Grâce à une technique de pompage la population du niveau fondamental  $E_0$  passe au niveau  $E_3$  de durée de vie très longue (par exemple pour un laser à rubis est de l'ordre de  $10^{-3}$  s) et qui ne peut pas retourner directement vers le fondamental  $E_0$  (raie

interdite), se dépeuple par une transition non radiative vers le niveau inférieur  $E_2$  de durée de vie relativement plus courtes (pour un laser à rubis le  $\tau_2$  est d'ordre de  $10^{-9}$  s). La raie lasante correspond à la transition  $E_2 \rightarrow E_1$ , dans ce cas la condition d'inversement de population est vérifiée puisque le niveau  $E_1$  est un niveau excité (de population très faible) [6], ce laser fonctionne alors en **continu**.

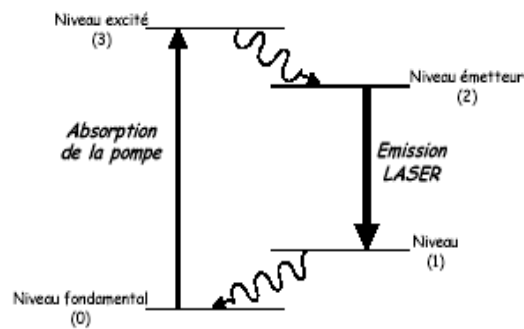


FIGURE 1.2 – Système laser à 4 niveaux [8].

## 1.5 Interaction laser-matériau pour les différents régimes impulsionnels

L'interaction laser-matériau correspond au dépôt d'une certaine quantité d'énergie lumineuse sur une surface solide. Cette énergie sera absorbée par les électrons par *Bremstrahlung* inverse [9]. L'absorption d'un seul photon laser visible, pour les semi-conducteurs, permet aux électrons de la bande de valence (BV) de passer à la bande de conduction (BC) car son énergie ( $\sim 2$  eV) est de même ordre que le gap qui sépare les deux bandes (par exemple pour le silicium, l'énergie du gap, à température ambiante, est de l'ordre de 1.12 eV). Par contre, pour les diélectriques qui sont transparents à la lumière,



il faut fournir plusieurs de photons pour permettre aux électrons de franchir la bande interdite [3] (par exemple le diamant possède un écart d'énergie interdite de 5.5 eV qui est bien supérieure à l'énergie d'un seul photon laser). L'avancement des technologies laser a permis de compresser temporellement la durée de l'impulsion laser de quelques nanosecondes jusqu'au femtoseconde [6]. D'après les expériences les physiciens ont constaté que l'interaction laser-matériau dépend fortement du régime d'impulsion [9].

### 1.5.1 Régime nanoseconde

La durée d'impulsion d'un laser nanoseconde ( $ns$ ) est de l'ordre de  $10^{-9}$  s qui est supérieure à la durée de relaxation électron-électron ( $\sim 10^{-13}$  s) et la durée de relaxation électron-phonon ( $\sim 10^{-12}$  s) [10]. Ce type d'impulsion est considéré comme une impulsion longue ce qui permet la diffusion thermique à l'intérieur du matériau jusqu'à atteindre la température de fusion d'où la formation d'une couche liquide qui rend le micro-usinage compliqué et de qualité médiocre [3]. En premier lieu, les électrons absorbent l'énergie du rayonnement laser pour aller vers des niveaux excités et après quelques  $ps$  ils transfèrent leurs énergies au réseau par collisions électron-phonon jusqu'à atteindre la température critique de fusion pour laquelle une partie du matériau passe de la phase solide à la phase liquide. On peut dire que l'interaction laser  $ns$ -matériau est un phénomène purement thermique.



FIGURE 1.3 – Résultat d’interaction laser *ns*-matériau (saphir) [9].

### 1.5.2 Régime picoseconde

La durée de l’impulsion d’un laser picoseconde (*ps*) est de même ordre que la relaxation électron-phonon  $10^{-12}$  s mais supérieure à celle de relaxation électron-électron. Par conséquent, les électrons ont suffisamment de temps pour s’échauffer et pour transférer leurs énergies au réseau durant l’irradiation via des collisions électron-phonon, ce qui entraîne une évolution semi-simultanée des deux sous-systèmes électrons et réseau [10].

### 1.5.3 Régime femtoseconde

La durée de l’impulsion d’un laser femtoseconde (*fs*) est de l’ordre de  $10^{-15}$  s bien inférieure à la durée de relaxation électron-électron et la relaxation électron-phonon, c’est pourquoi cette impulsion est considérée comme ultracourte [10]. Au cours de cette interaction les électrons absorbent l’énergie émis par le laser puis transfèrent leur énergie au réseau par collisions électron-phonon. On constate que l’équilibre thermique s’établit après quelques picosecondes, c’est-à-dire que le réseau reste complètement froid pendant l’irradiation, ce qui signifie que l’interaction laser *fs*-matériau est une interaction

athermique [10]. Le micro-usinage des matériaux par un laser  $fs$  est de haute qualité sans transfert thermique comme l'indique la figure 1.4.

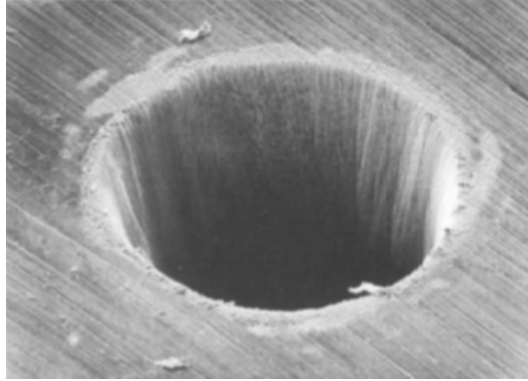


FIGURE 1.4 – Résultat d'interaction laser  $fs$ -matériau (saphir) [9].

## 1.6 Processus d'interaction laser $fs$ -matériau

### 1.6.1 *Processus fondamentale*

Ce processus correspond à l'excitation électronique suite à l'absorption d'énergie laser par le *Bremstrahlung* inverse ce qui donne lieu à des transitions inter-bandes dans les semi-conducteurs. Il y a aussi l'excitation multiphotoniques qui permet aux électrons d'un diélectrique de passer de la BV à la BC en un temps inférieur au temps de transfert thermique [11].

### 1.6.2 *Processus secondaires*

Le processus fondamental est suivie par un ensemble de processus dits secondaires.

### **a- Relaxation électron-électron**

A une échelle de temps de l'ordre de  $10^{-13}$  s les électrons se trouvent dans des niveaux excités puis se relaxent thermiquement en émettent des photons ce qui correspond à un refroidissement électronique [10].

### **b- Relaxation électron-phonon**

Les électrons excités se refroidissent grâce à la relaxation électronique en transférant leurs énergie aux atomes du réseau via des collisions électron-phonon en un temps d'ordre de  $10^{-12}$  s jusqu'à ce que l'équilibre thermique total soit atteint [10].

### **c- Processus thermodynamique**

A la suite de transfert d'énergie aux atomes une diffusion thermique prend lieu à l'intérieur du matériau à une échelle de temps de l'ordre de  $10^{-11}$  s [10]. Ce phénomène physique dépend des propriétés optiques et thermiques du matériau [12] et lorsqu'il atteint un certaine température un plasma d'électrons mobiles se forme. Le déplacement des électrons avec des vitesses supersoniques génère une onde de choc qui expulse de la matière hors du matériau.

### **d- Processus photo-chimique**

A un temps d'ordre de  $10^{-10}$  s une couche liquide se forme due à l'affaiblissement des liaisons chimiques suite au contact avec l'environnement tel que l'air ou une oxydation de surface qui peut apparaître .

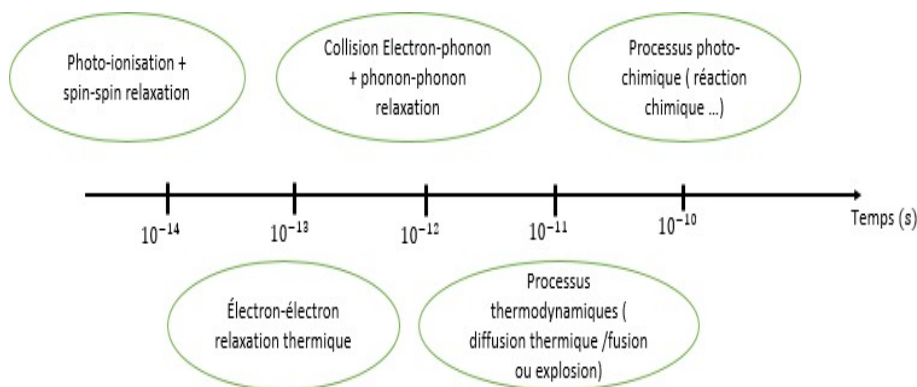


FIGURE 1.5 – Echelle de temps des différents processus secondaires de l'interaction laser *fs*-matériau [10].

## 1.7 Mécanismes fondamentaux d'ionisation par une impulsion laser ultracourte

L'ionisation est la principale cause d'un changement structurelle. Elle conduit à la formation d'un plasma d'électrons libres ce qui implique l'expulsion extérieure de la matière de la cible atomes et/ou ions [13]. La densité électronique générée par ionisation dépend fortement de la durée de l'impulsion du laser incident, plus la durée est longue plus le matériau est endommagé. Deux mécanismes sont considérés pour la production d'électrons : la photo-ionisation et l'ionisation par avalanche [10].

### 1.7.1 *Photo-ionisation*

La photo-ionisation est l'étape clé du micro-traitement d'un matériau par des impulsions laser ultra-brèves soit par la production directe des électrons via l'absorption multi-photons lorsque l'intensité du laser est faible ou par effet tunnel lorsqu'elle est forte ou indirectement par le biais des porteurs

de charge libres qui provoquent l'ionisation par avalanche [13].

### a- Ionisation par absorption multi-photoniques (MPI)

Dans un diélectrique les électrons peuvent faire des transitions inter-bandes via l'absorption multi-photoniques sous l'action d'un champ électrique induit par le laser car un seul photon n'est pas assez énergétique pour permettre ce type de transition [12]. L'absorption multi-photoniques peut être définie comme une absorption simultanée de deux ou plusieurs photons d'énergie inférieure à l'énergie du gap [13].

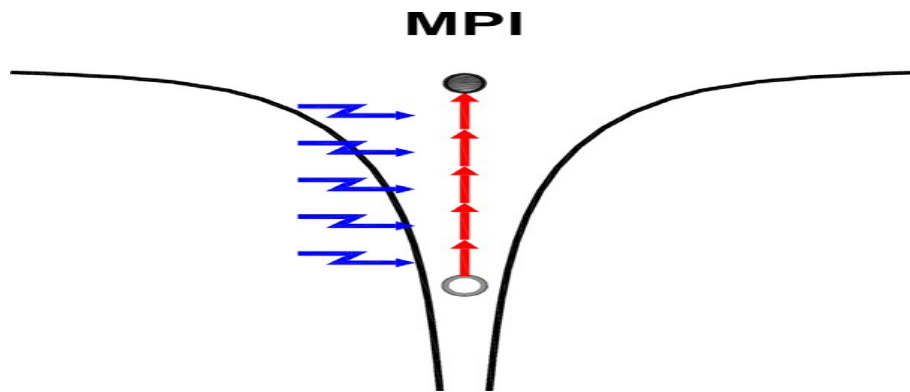


FIGURE 1.6 – Schéma de l'ionisation par absorption multi-photoniques [13].

### b- Ionisation par effet tunnel

L'application d'un champ électrique suffisamment intense réduit le potentiel de *Coulomb* qui lie l'électron de valence à son noyau. Lorsque le champ électrique du laser atteint un certain seuil, la barrière Coulombienne peut être supprimée en causant la séparation d'un électron de son atome ce qui définit l'ionisation par effet tunnel [3]. Les électrons générés par cet effet sont libres et peuvent servir à enclencher une avalanche d'ionisation dans le matériau.

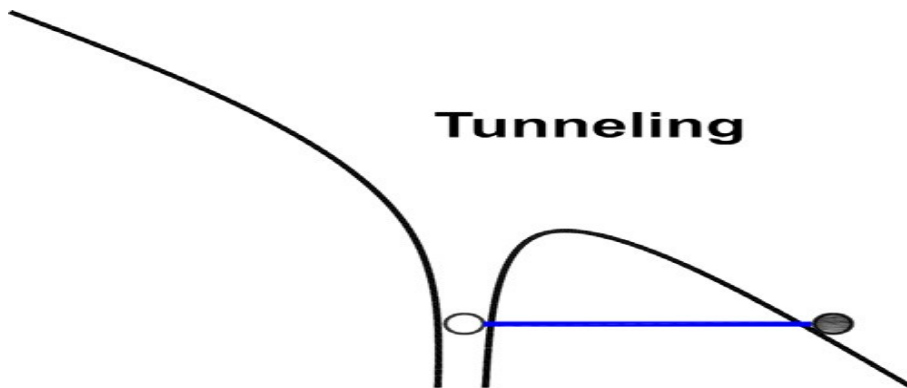


FIGURE 1.7 – Schéma de l'ionisation par effet tunnel [13].

### 1.7.2 Ionisation par avalanche (AI)

L'ionisation par avalanche est un processus d'absorption des photons laser incidents par des porteurs de charge libres c'est-à-dire des électrons générés par l'absorption multi-photoniques et/ou par effet tunnel qui conduit à la libération de porteurs de charge supplémentaires [13], un phénomène similaire à la décharge électrique dans les gaz [11]. La présence d'électrons libres dans la BC enclenche ce type de mécanisme. L'absorption linéaire des photons par ces électrons permet d'accéder à des niveaux d'énergie plus élevée [12]. Lorsque l'énergie des électrons dans la BC vérifiée la condition mentionnée dessous une ionisation par impact prend lieu dans la BV [13].

$$k\hbar\omega \geq E_g \quad (1.1)$$

avec  $k$  le nombre de photons absorbés,  $\hbar$  est la constante réduite de *Planck* connue aussi sous le nom de la constante de *Dirac*,  $\omega$  est la fréquence de laser et  $E_g$  est l'énergie de gap .

Le coefficient d'ionisation par avalanche est donné par la formule suivante

[2] :

$$\alpha_i = \frac{\sigma}{n^2 E_g} \quad (1.2)$$

où :

$\sigma$  : section efficace (cm<sup>2</sup>).

$E_g$  : énergie de gap(eV).

$n$  : indice de réfraction.

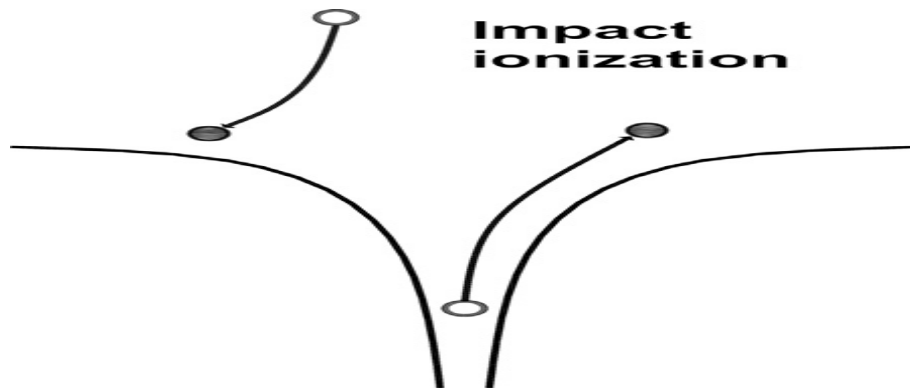


FIGURE 1.8 – Schéma de l'ionisation par avalanche [13].

## 1.8 Conclusion

Le traitement précis des matériaux par des lasers d'impulsions longues nanoseconde ou picoseconde est difficile en raison de transfert thermique contrairement aux lasers femtosecondes qui offrent une bonne qualité d'usinage avec un minimum de dommages structurels dus à l'absence de transfert thermique. Ce processus athermique contrôle la qualité du micro-usinage et plus la densité électronique est importante plus le changement structurel devient important et irréversible.



# Chapitre 2

## Ionisation d'un diélectrique par une impulsion laser ultracourte.

### 2.1 Introduction

Le micro-traitement d'un matériau transparent par un laser *fs* consiste à une déformation structurelle à une échelle d'ordre de micro-mètre sans thermalisation [2]. Le paramètre majeur qui doit être considéré durant ce type d'interaction est la densité électronique générée à la surface par absorption multi-photoniques, effet tunnel et ionisation par avalanche, et qui joue un rôle primordial dans la prédiction du seuil d'endommagement d'un diélectrique [13]. Ce chapitre est consacré à une étude approfondie des mécanismes d'ionisation et la détermination de taux d'ionisation en se basant sur la théorie de *Keldysh*.

## 2.2 Interaction laser *fs*-diélectrique

Les lasers *fs* ont montré des résultats spectaculaires au cours de ces dernières années pour le traitement des matériaux durs et transparents classés dans la catégorie des diélectriques. L'interaction est initiée par le dépôt d'une grande quantité d'énergie en un temps ultra-bref en raison des propriétés du faisceau laser incident : la courte durée d'impulsion et la haute puissance [2]. Les diélectriques présentent une énergie de gap supérieure à l'énergie d'un seul photon laser visible ce qui donne lieu à des phénomènes non-linéaires tels que l'absorption multi-photoniques, l'effet tunnel et l'ionisation par avalanche d'où la génération d'une densité d'électrons libres à la surface du matériau qui induit une modification structurelle irréversible [3]. Les mécanismes d'interactions laser *fs*-diélectrique sont très compliqués car ils sont affectés par plusieurs paramètres certains sont liés aux caractéristiques du laser incident comme la durée de l'impulsion, l'énergie, la longueur d'onde ...etc, et d'autres liés aux propriétés de la cible traitée par exemple : l'indice de réfraction et coefficient d'absorption [2].

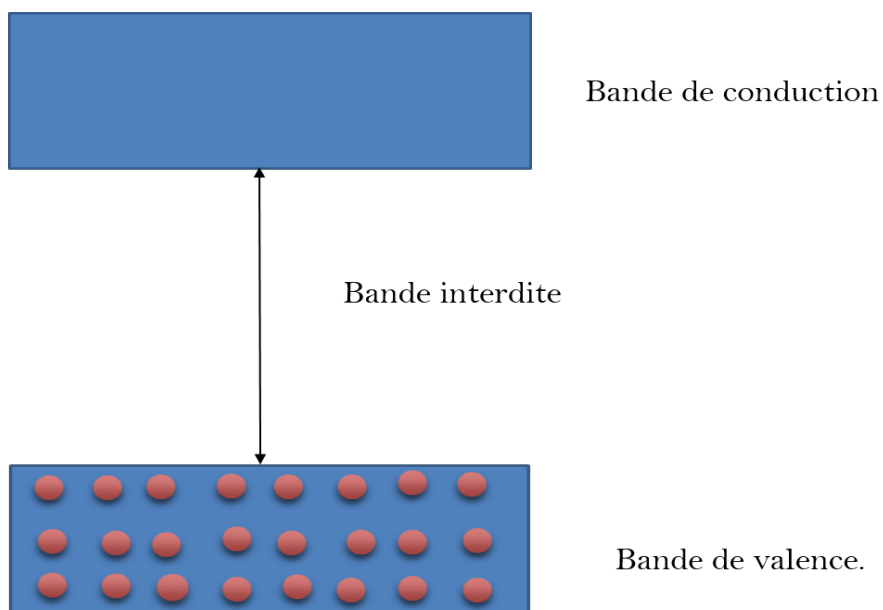


FIGURE 2.1 – Configuration des bandes électroniques d’un diélectrique.

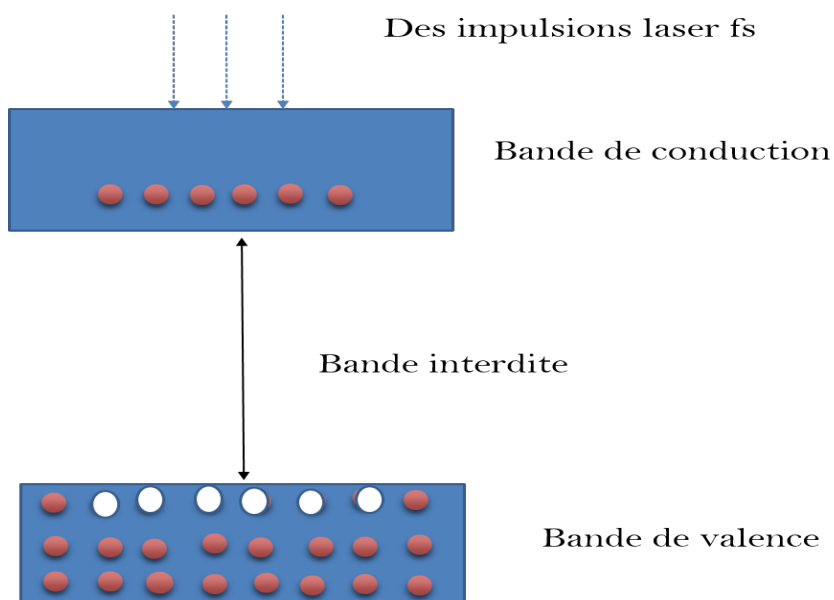


FIGURE 2.2 – Configuration des bandes électroniques d’un diélectrique lors d’interaction laser.

## 2.3 Caractéristiques du laser incident

### 2.3.1 *L'intensité du laser*

On considère une impulsion laser dont le profil est Gaussien défini par la formule suivante [13] :

$$I(r, t) = I_0 \exp\left[-2\left(\frac{r}{w_0}\right)^2\right] \exp\left[-2\left(\frac{t}{\tau}\right)^2\right] \quad (2.1)$$

où :

$I_0$  : l'intensité ou l'irradiance maximale ( $\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$ ).

$w_0$  : le rayon du faisceau laser incident ( $\mu\text{m}$ ).

$\tau$  : la durée de l'impulsion laser mesurée à la largeur à mi-hauteur (fs).

$r$  : la distance radiale mesurer par rapport au centre du faisceau laser ( $\mu\text{m}$ ).

### 2.3.2 *L'irradiance maximale*

Pour décrire plus précisément l'interaction laser *fs*-diélectrique on définit l'intensité du laser au point focal sur le matériau, et qui est donnée par [13] :

$$I_0 = \frac{4E_p}{\tau\omega_0^2\pi\sqrt{2\pi}} = \frac{4P}{\tau\omega_0^2\pi\sqrt{2\pi}R} \quad (2.2)$$

Avec :

$$E_p = \frac{P}{R}$$

où :

$E_p$  : l'énergie du laser (eV).

$\tau$  : la durée de l'impulsion du laser (fs).

$w_0$  : le rayon du faisceau laser incident ( $\mu\text{m}$ ).

$P$  : la puissance du laser (mW).

$R$  : le taux de répétition de l'impulsion laser (kHz).

### 2.3.3 L'énergie de l'impulsion laser

L'énergie de l'impulsion laser peut être calculée selon la relation suivante [13] :

$$E_p = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_0^{2\pi} \int_0^{\infty} I(r, t) r dr d\theta dt \quad (2.3)$$

## 2.4 Caractéristiques du matériau

Pour étudier les différentes propriétés d'un solide, on définit le modèle de *Drude* qui représente une théorie classique développée au *XX* ème siècle par le physicien allemand *Paul Drude*. Ce modèle décrit le comportement des électrons dans les métaux dans le but de comprendre leurs propriétés électroniques (conductivité électrique, conductivité thermique...etc) [14].

Ce modèle considère les électrons d'un métal comme une sorte de gaz en mouvement libre et aléatoire et ralenti par des forces de rappel vers les atomes et/ou ions [14]. Il peut être modifié pour décrire les propriétés électroniques d'un diélectrique, dans ce cas il décrit le comportement des électrons liés aux atomes. Par conséquent, il permet de comprendre l'influence de la structure électronique sur les caractéristiques du matériau (la permittivité, l'indice de réfraction...etc).

Il convient de noter que ce modèle ne tient pas en compte des aspects quantiques [14], d'où la nécessité de faire appel à des modèles théoriques plus avancés basés sur la physique quantique comme la théorie de *Keldysh*.

### 2.4.1 La fonction diélectrique

Pour analyser l'influence des électrons libres sur la surface d'un matériau transparent, le modèle de *Drude* donne une relation entre la fonction diélectrique et la densité électronique, donnée par la formule suivante [2] :

$$\begin{aligned}\epsilon(\omega) &= \epsilon_1(\omega) + i\epsilon_2(\omega) \\ \epsilon(\omega) &= \left(1 - \frac{\omega_p^2(n_e)\tau_e^2(\omega)}{1 + \omega^2\tau_e^2(\omega)}\right) + i\left(\frac{\omega_p^2(n_e)\tau_e^2(\omega)}{\omega(1 + \omega^2\tau_e^2(\omega))}\right)\end{aligned}\quad (2.4)$$

avec :

$\omega_p$  : la fréquence du plasma (rad.s<sup>-1</sup>).

$\omega$  : la fréquence du laser incident (rad.s<sup>-1</sup>).

$n_e$  : densité électronique (cm<sup>-3</sup>).

$\tau_e$  : le temps de relaxation des électrons (s).

### 2.4.2 La réflectivité

La réflectivité en fonction de l'indice de réfraction  $n$  du matériau et le coefficient d'extension  $\chi$ , est donnée par l'expression suivante [2] :

$$R = \frac{(n - 1)^2 + \chi^2}{(n + 1)^2 + \chi^2}\quad (2.5)$$

### 2.4.3 Le coefficient d'absorption d'un matériau

Le coefficient d'absorption de l'énergie laser par les électrons selon le modèle de *Drude* est donné par [2] :

$$\alpha_h = \frac{4\pi\chi}{\lambda}\quad (2.6)$$

où :

$\chi$  : le coefficient d'extension (K<sup>-1</sup>).

$\lambda$  : la longueur d'onde du laser (nm).

Puisque le matériau considéré est un diélectrique une partie de l'énergie absorbée servira à l'ionisation des atomes du réseau, le coefficient d'absorption devient alors [2] :

$$\alpha = \alpha_h + (\alpha_i I n_e + \sigma_k I^k) E_g \quad (2.7)$$

avec :

$\sigma_k$  : le coefficient d'ionisation par absorption multi-photoniques.

$\alpha_i$  : le coefficient d'ionisation par avalanche.

$n_e$  : la densité électronique ( $\text{cm}^{-3}$ ).

$k$  : le nombre de photons.

$I$  : l'intensité du laser ( $\text{W.cm}^{-2}$ ).

$I^k$  : l'intensité du laser en fonction de nombre de photons ( $\text{W.cm}^{-2}$ ).

$E_g$  : l'énergie du gap (eV).

## 2.5 Modélisation de l'ionisation d'un diélectrique par une impulsion laser ultracourte suivant la théorie de *Keldysh*

De nombreux modèles de l'ionisation d'un diélectrique par un laser impulsionnel ultra-bref sont basés sur les travaux de *L.V Keldysh* qui représentent une analyse des mécanismes d'ionisation d'un solide transparent à une échelle du temps ultracourte. La modélisation repose essentiellement sur la définition de la distribution de la densité électronique à la surface irradiée [13].

### 2.5.1 Théorie de Keldysh

La théorie de *L.V Keldysh* est basée sur une description semi-classique des électrons qui considère à la fois le comportement classique et quantique des électrons pendant l'interaction laser-matériau. Cette théorie permet de comprendre les différents mécanismes d'ionisation induits par le laser incident (l'absorption multi-photoniques, l'effet tunnel et l'ionisation par avalanche). Elle permet également de calculer le taux de photo-ionisation d'un diélectrique, d'énergie de gap  $E_g$ , par la formule suivante [3] :

$$W_{PI} = \frac{2\omega}{9\pi} \left( \frac{\omega\mu}{\gamma_1\hbar} \right)^{\frac{3}{2}} Q(\gamma, x) \exp[-\pi(x+1) \frac{K(\gamma) - E(\gamma_1)}{E(\gamma_2)}] \quad (2.8)$$

avec :

$$Q(\gamma, x) = \sqrt{\frac{2}{K(\gamma_2)}} \sum_{n=0}^{\infty} \exp[-n\pi \frac{K(\gamma_2) - E(\gamma_2)}{E(\gamma_1)}] \phi \left[ \sqrt{\frac{-2x+n}{2K(\gamma_2)E(\gamma_2)}} \right]$$

$x$  correspond à :

$$x = \frac{2 E_g}{\pi \hbar \omega} \frac{\sqrt{1+\gamma^2}}{\gamma} E\left(\frac{1}{\sqrt{1+\gamma^2}}\right)$$

où :

$\omega$  : la fréquence du laser ( $\text{rad.s}^{-1}$ ).

$\mu$  : la masse réduite électron-trou donnée par :  $\mu = \frac{m_e m_h}{m_e + m_h}$  avec  $m_h$  est la masse de trou (kg).

$\hbar$  : la constante de *Dirac* (J.s).

$n$  : l'indice de réfraction.

$\phi$  : l'intégrale de *Dawson*.

$\gamma$  : paramètre de *Keldysh*.

$\gamma_1$  et  $\gamma_2$  sont des coefficients donnés par :  $\gamma_1 = \sqrt{\frac{\gamma^2}{1+\gamma^2}}$  et  $\gamma_2 = \sqrt{\frac{1}{1+\gamma^2}}$

$K(\gamma)$  et  $E(\gamma)$  sont deux fonctions elliptiques complètes, la fonction  $K(\gamma)$  correspond à l'intégrale elliptique donnée par :

$$K(\gamma) = \int_0^{\frac{\pi}{2}} \frac{1}{\sqrt{1-\gamma^2 \sin^2(\theta)}} d\theta$$



et pour la fonction  $E(\gamma)$  est donnée par :

$$E(\gamma) = \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sqrt{1 - \gamma^2 \sin^2(\theta)} d\theta$$

### a- Taux d'ionisation par absorption multi-photoniques

L'absorption multi-photoniques est une excitation non-linéaire des électrons due à l'absorption simultanée de plusieurs photons par le même électron [13]. Dans le cas où on prend en considération uniquement l'absorption multi-photoniques, ce qui est souvent le cas pour les régimes laser de faible intensité, le taux de photo-ionisation décrit par *Keldysh* se réduit à l'expression suivante [3] :

$$W_{MPI} = \frac{2\omega}{9\pi} \left(\frac{\mu\omega}{\hbar}\right)^{\frac{3}{2}} \phi \sqrt{2\left(k - \frac{E_g}{\hbar\omega}\right)} e^{2k} \left[\frac{e^2}{8\mu\omega^2 E_g \epsilon_0 c n_0}\right]^k \quad (2.9)$$

avec :

$\mu$  : la masse réduite (kg).

$\omega$  : la fréquence du laser (rad.s<sup>-1</sup>).

$\hbar$  : la constante de *Dirac* (J.s).

$E_g$  : l'énergie du gap (eV).

$n_0$  : l'indice de réfraction non-linéaire.

$\epsilon$  : la permittivité du vide ( $\epsilon=8,854 \times 10^{-12}$  F.m<sup>-1</sup>).

$k$  : le nombre de photons absorbés.

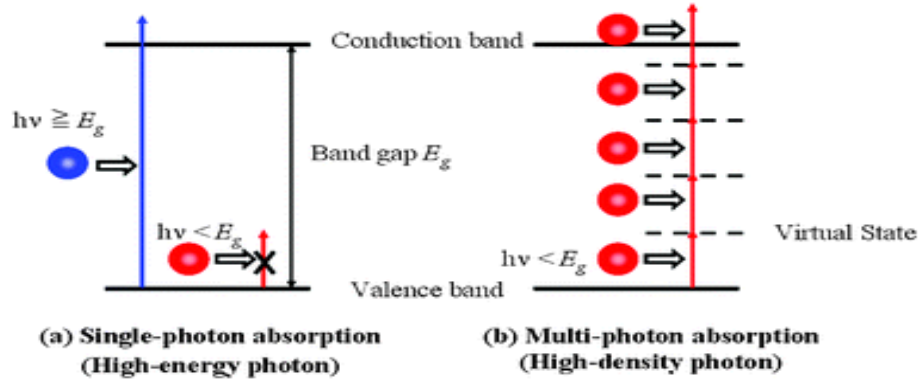


FIGURE 2.3 – Processus d'absorption multi-photoniques [15].

### b- Taux d'ionisation par effet tunnel

Un autre processus de génération d'électrons libres peut s'ajouter à l'absorption multi-photoniques lorsque le champ électromagnétique appliqué par le laser est fort connu par l'effet tunnel qui abaisse la barrière coulombienne qui lie l'électron avec son atome en causant une modification interne de l'atome qui se traduit par l'arrachement d'un ou de plusieurs électrons de son nuages électronique [3]. Dans ce cas le taux de photo-ionisation de *Keldysh* par effet tunnel est [3] :

$$W_{tunnel} = \frac{2}{9\pi^2} \frac{E_g}{\hbar} \left( \frac{\mu E_g}{\hbar^2} \right)^{\frac{3}{2}} \left( \frac{\hbar\omega}{E_g\gamma} \right)^{\frac{5}{2}} \exp\left[ \frac{\pi}{2} \frac{E_g\gamma}{\hbar\omega} \left( 1 - \frac{\gamma^2}{8} \right) \right] \quad (2.10)$$

### c- Taux d'ionisation par avalanche

L'excitation multi-photoniques et l'effet tunnel sont considérés comme un moyen d'initiation de l'ionisation par avalanche car ils fournissent des porteurs de charge libres dans la BC. Ce mécanisme se déclenche par l'absorption linéaire des photons par les électrons libres présents à la surface de la cible irradiée ce qui leur permet d'accéder à des niveaux de haute énergie jusqu'à atteindre une énergie de même ordre ou supérieure à l'énergie de la bande

interdite, l'ionisation par collisions prend lieu dans la BV [3].

$$W_{AI} = \frac{V_e e E}{E_g} \exp\left[-\frac{E_i}{1 + \frac{E}{E_p} + E_{kt}}\right] \quad (2.11)$$

où :

$V_e$  : vitesse de déviation de l'électron par le champ électrique du laser (m.s<sup>-1</sup>).

$e$  : charge de l'électron (C).

$E_i$  : l'énergie de diffusion par ionisation (eV).

$E_p$  : l'énergie de diffusion par les phonons optiques (eV).

$E_{kt}$  : l'énergie de diffusion thermique (eV).

$E$  : l'énergie du laser (eV).

### 2.5.2 Paramètre de Keldysh

La photo-ionisation combine deux processus : l'absorption multi-photoniques et l'effet tunnel. Cependant, pour mieux connaître la contribution de chacun d'eux on fait appel au paramètre de *Keldysh* défini par l'expression suivante [13] :

$$\gamma = \frac{\omega}{e} \sqrt{\frac{m_e c \epsilon_0 E_g}{I}} \quad (2.12)$$

où :

$\omega$  : la fréquence laser (rad.s<sup>-1</sup>).

$e$  : la charge de l'électron (C).

$E_g$  : l'énergie du gap (eV).

$m_e$  : la masse d'un électron (kg).

$c$  : la vitesse de lumière dans le vide (m.s<sup>-1</sup>).

$I$  : l'intensité du laser (W.cm<sup>-2</sup>).

Il est admis que lorsque :

$\gamma < 1.5$  l'ionisation par effet tunnel est le processus dominant.

$\gamma > 1.5$  l'absorption multi-photonique devient le processus le plus dominant.

## 2.6 Évolution temporelle de la densité électronique

Lors de l'interaction d'un laser *fs* avec un diélectrique un plasma d'électrons libres est généré par les différents processus d'ionisation impliqués. Par conséquent, pour suivre l'évolution de la densité électronique au cours de l'irradiation, on définit la variation du taux d'électrons en fonction du temps donnée par la formule suivante [16] :

$$\frac{dn_e(r, t)}{dt} = \alpha_i I(t, r) n_e(r, t) + W_{ph} - \frac{n_e(r, t)}{\tau_{ed}} \quad (2.13)$$

avec :

$\alpha_i$  : le coefficient d'ionisation par avalanche ( $\text{cm}^2 \cdot \text{J}^{-1}$ ).

$I$  : l'intensité du laser ( $\text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$ ).

$W_{ph}$  : le taux de photo-ionisation ( $\text{m}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$ ).

$\tau_{ed}$  : le temps de diffusion des électrons libres (s).

$n_e$  : la densité électronique ( $\text{cm}^{-3}$ ).

Le terme  $\frac{n_e(r, t)}{\tau_{ed}}$  correspond à la perte d'électrons en raison de la diffusion électronique de la région focale du laser vers le milieu environnant. Cette diffusion prend lieu après quelques picosecondes et puisque le laser incident est de durée d'impulsion ultracourte quelques femtosecondes, la perte devient

négligeable [16].

## 2.7 Conclusion

Le taux d'ablation lors de l'interaction laser *fs*-diélectrique dépend de la densité des électrons libres générée dans la bande conduction. Cette densité électronique est affectée par plusieurs paramètres liés à la fois aux propriétés du laser incident et de la cible transparente. De plus, la théorie de *Keldysh* fournit un modèle qui permet de définir l'évolution de la distribution électronique à la surface du matériau et le taux d'ionisation de chaque mécanisme qui libère des porteurs de charge ce qui nous permet aussi de faire une comparaison entre la contribution de chaque processus d'ionisation.



# Chapitre 3

## Étude de l'ionisation du diamant par des impulsions laser femtosecondes.

### 3.1 Introduction

Suite aux progrès récents dans le contrôle et la génération des impulsions lasers ultracourtes de l'ordre de la femtoseconde, des nouvelles voies ont été ouvertes dans le domaine du nano/micro-usinage des matériaux transparents comme le diamant qui est très connu comme un matériau dur possédant une large bande interdite ( $\sim 5.5$  eV) [16]. Pour augmenter la précision des modifications structurales d'une surface diélectrique il faut comprendre les différents mécanismes induits au cours de l'interaction, à savoir, l'absorption multi-photoniques, l'ionisation non-linéaire, le transfert et la diffusion d'énergie thermique à l'intérieur du matériau irradié par laser. Il est difficile de comprendre ces processus de manière qualitative sans fournir un modèle adéquat. Ce chapitre représente une étude des processus fondamentaux de ce

type d'interaction en se basant sur la théorie de *Keldysh*.

## 3.2 Description du modèle d'ionisation du diamant par un laser *fs*

### 3.2.1 *Description du modèle étudié*

Dans ce chapitre nous modélisons un diamant d'épaisseur  $3 \mu\text{m}$  dont la surface est irradiée par des impulsions laser de durée 120 fs. Afin de voir l'évolution dynamique du plasma d'électrons libres excités durant l'irradiation, nous avons considéré deux valeurs de longueur d'ondes qui appartiennent à deux domaines différents du spectre EM : la première 532 nm appartient au visible tandis que la deuxième 1064 nm est dans l'infra-rouge (IR). De plus, le modèle est implémenté par le logiciel MATLAB et les résultats sont obtenus pour des puissances laser qui varient de 0.1 mW jusqu'à 10 mW. Les valeurs des paramètres utilisés pour la simulation sont données dans le tableau ci-dessous :



Paramètre	Notion	Valeur
Longueur d'onde (nm)	$\lambda$	1064 et 532
Durée de l'impulsion laser (fs)	$\tau$	120
Taux de répétition (kHz)	$f$	250
Puissance (mW)	$P$	0.1.....10
Energie de gap (eV) [16]	$E_g$	5.5
Temps de collision e-e (fs)	$\tau_{e-e}$	1
Indice de réfraction linéaire [16]	$n$	2.39
Indice de réfraction non-linéaire [16]	$n_0$	$1.3 \cdot 10^{-15}$

TABLE 3.1 – Valeurs des paramètres utilisés dans la simulation.

### 3.2.2 Description physique de l'interaction

L'interaction laser *fs*-diélectrique est initiée par le dépôt d'énergie lumineuse à la surface du solide. Cette énergie est absorbée non-linéairement en volume par les électrons qui se trouvent dans la BV [3] car le matériau choisit comme modèle qui est le diamant possède une large bande interdite de valeur de 5.5 eV séparant la BV et la BC. L'excitation non-linéaire des électrons se fait soit par absorption multi-photoniques soit par effet tunnel selon le régime d'intensité du laser incident en générant un plasma d'électrons. Lorsque la densité des électrons excités dépasse la densité critique, le diamant prend des propriétés métalliques, l'absorption des photons à la surface devient alors linéaire ce qui permet aux électrons de la BC d'accéder à des niveaux énergétiques très élevés. Ensuite, quand l'énergie cinétique des électrons devient supérieure ou égale à l'énergie du gap le processus d'ionisation par avalanche s'enclenche [13].

La théorie de *Keldysh* donne les taux d'ionisation de chaque processus [3],

leurs formules sont explicitement détaillées dans le chapitre 2. Ainsi, le paramètre de *Keldysh*  $\gamma$  dont l'expression est donnée par l'équation (2.12) permet de savoir quel processus de photo-ionisation est le plus dominant. D'un autre côté, l'équation (2.13) permet de suivre l'évolution de la densité des électrons libres à la surface du diamant au cours du temps.

### 3.3 Étude des deux régimes d'ablation laser

Les études expérimentales et théoriques ont montré qu'il existe deux régimes d'ablation laser pour les matériaux transparents, le premier est le régime de faible énergie laser et l'autre est un régime de forte énergie laser [16]. Dans le modèle étudié dans ce chapitre on a fait varier la longueur d'onde du laser de telle sorte qu'on passe d'un régime à un autre dans le but de comparer entre les deux pour choisir le meilleur pour la fabrication et la modification structurale des matériaux à large gap.

#### 3.3.1 Comparaison des taux de photo-ionisation entre les deux régimes d'irradiation

Les figures (3.1) et (3.2) représentent les taux de photo-ionisation du diamant en fonction de l'intensité du laser de 120 fs pour deux valeurs de longueurs d'ondes  $\lambda = 1064$  nm et  $\lambda = 532$  nm et le paramètre de *Keldysh*  $\gamma$  est également représenté. Ces résultats permettent de visualiser la contribution de l'ionisation par absorption multi-photoniques (MPI) et l'effet tunnel à la génération des électrons libres à la surface du diamant.

D'après les résultats obtenus par la simulation, on observe que pour  $\lambda = 1064$  nm lorsque l'intensité du laser est en dessous de  $9.541 \times 10^{11}$  W.cm<sup>-2</sup> l'ionisation par absorption multi-photoniques est le processus dominant avec

$\gamma = 3$  (supérieure à 1.5), ce qui est en accord avec la théorie mentionnée dans le chapitre 2. Pour des intensités comprises entre  $9.541 \times 10^{11} \text{ W.cm}^{-2}$  et  $4.498 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$  on remarque que les deux processus (effet tunnel et l'ionisation par absorption multi-photoniques) contribuent simultanément à la génération des électrons libres, la figure (3.1) montre que dans ce cas la valeur de  $\gamma$  correspond bien à 1.5. Au delà de  $4.498 \times 10^{12} \text{ W.cm}^{-2}$ , l'effet tunnel devient le processus principal de la photo-ionisation et la valeur de  $\gamma$  est dans ce cas inférieure à 1.5.

Pour  $\lambda = 532 \text{ nm}$  la figure (3.2) montre que l'effet tunnel ne devient dominant que lorsque l'intensité du laser est égale ou supérieure à  $5.69 \times 10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$ .

Le paramètre  $k$  mentionné dans les figure (3.1) et (3.2) représente les sous-états d'énergie virtuels qui émergent dans la bande interdite lors de l'exposition du diamant à un laser *fs*. On observe pour une longueur d'onde  $\lambda = 1064 \text{ nm}$  l'électron absorbe au moins 4 photons pour s'exciter vers la BC, tandis que pour  $\lambda = 532 \text{ nm}$  deux photons laser sont suffisant pour que le matériau s'ionise.

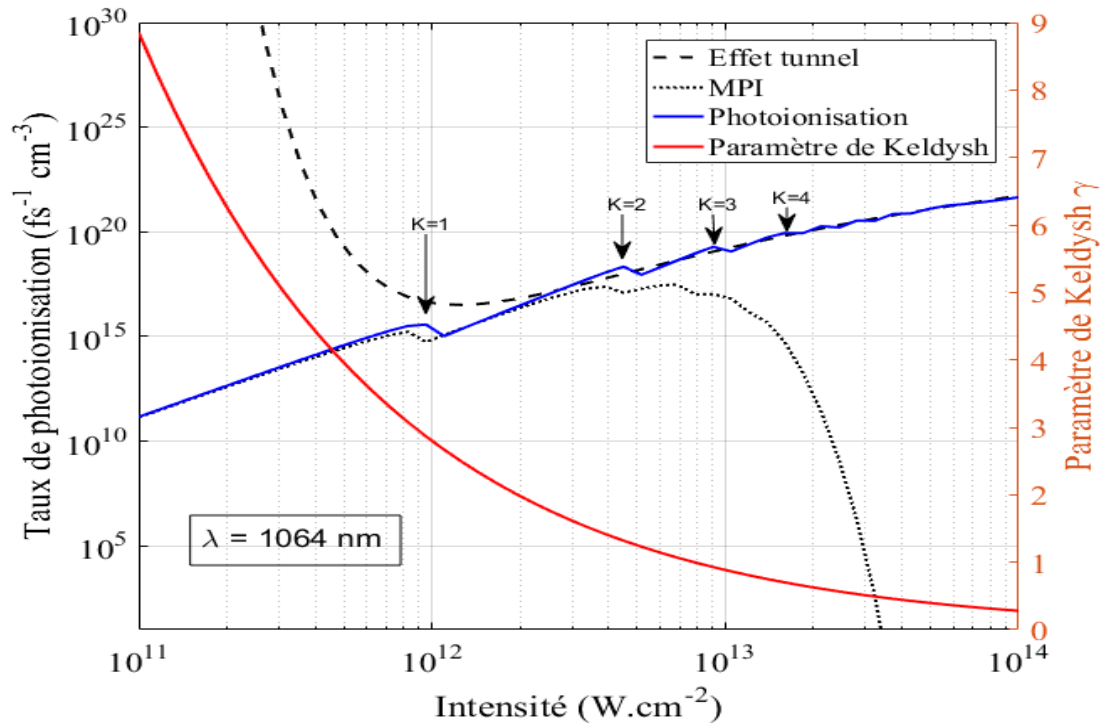


FIGURE 3.1 – Taux de photo-ionisation (trait bleu), par ionisation par absorption multi-photoniques (pointillés), par ionisation par effet tunnel (trait discontinu) en fonction de l'intensité laser à 120 fs pour une longueur d'onde  $\lambda = 1064$  nm. Le paramètre de *Keldysh* est représenté également (trait rouge).

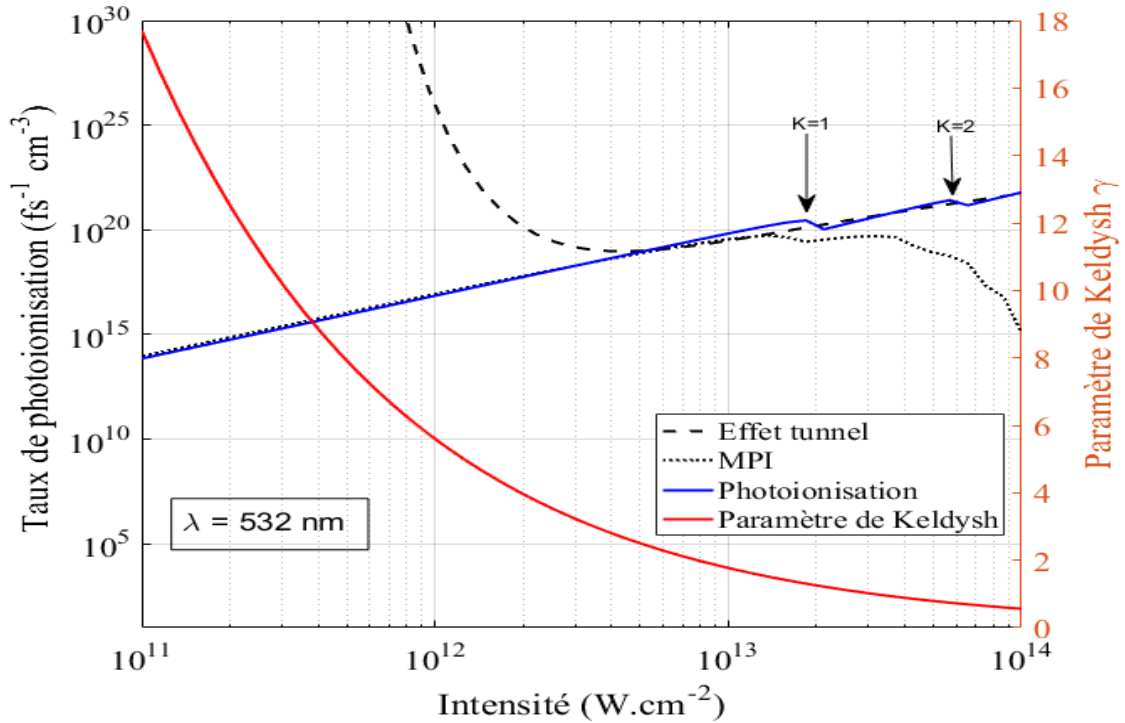


FIGURE 3.2 – Taux de photo-ionisation (trait bleu), par ionisation par absorption multi-photoniques (pointillés), par ionisation par effet tunnel (trait discontinu) en fonction de l'intensité laser à 120 fs pour une longueur d'onde  $\lambda = 532$  nm. Le paramètre de *Keldysh* est représenté également (trait rouge).

### 3.3.2 *Variation temporelle de la densité des électrons libres pour les deux longueurs d'ondes*

Les figures (3.3) et (3.4) représentent la variation de la densité électronique générée à la surface du diamant en fonction du temps suite à l'irradiation par un laser d'impulsion 120 fs et de puissance 2 mW pour deux valeurs de longueurs d'ondes 532 nm et 1064 nm, respectivement.

Les résultats montrent que la densité électronique est plus importante dans le

cas où  $\lambda = 532$  nm parce que l'énergie photonique déposée sur le matériau est plus élevée. La figure (3.3) montre que la densité des électrons libres dépasse la valeur critique ( $\sim 10^{21}$  cm<sup>-3</sup>), le diamant prend alors des caractéristiques métalliques.

On observe également que la densité électronique induite par ionisation par avalanche est beaucoup plus intense à 532 nm qu'à 1064 nm sous la même puissance laser. Ceci s'explique par le fait qu'à 532 nm l'énergie absorbée par les porteurs de charge libres ne se dissipe pas rapidement, car le temps de relaxation électron-électron et le temps de relaxation électron-phonon sont supérieurs à la durée de l'impulsion du laser, ce qui conduit à une accumulation de chaleur entraînant une augmentation de la température locale. Par conséquent, le taux de matière fondue devient important. En revanche pour  $\lambda = 1064$  nm on observe que la densité des électrons libres dans la BC est principalement due à la photo-ionisation car la contribution de l'ionisation par avalanche est négligeable (Electrons n'ont pas assez d'énergie pour l'enclencher), ce qui conduit à l'absence de transfert thermique vers le réseau, la cible conserve sa température. Par conséquent, le mirco-usinage est plus précis dans ce cas.

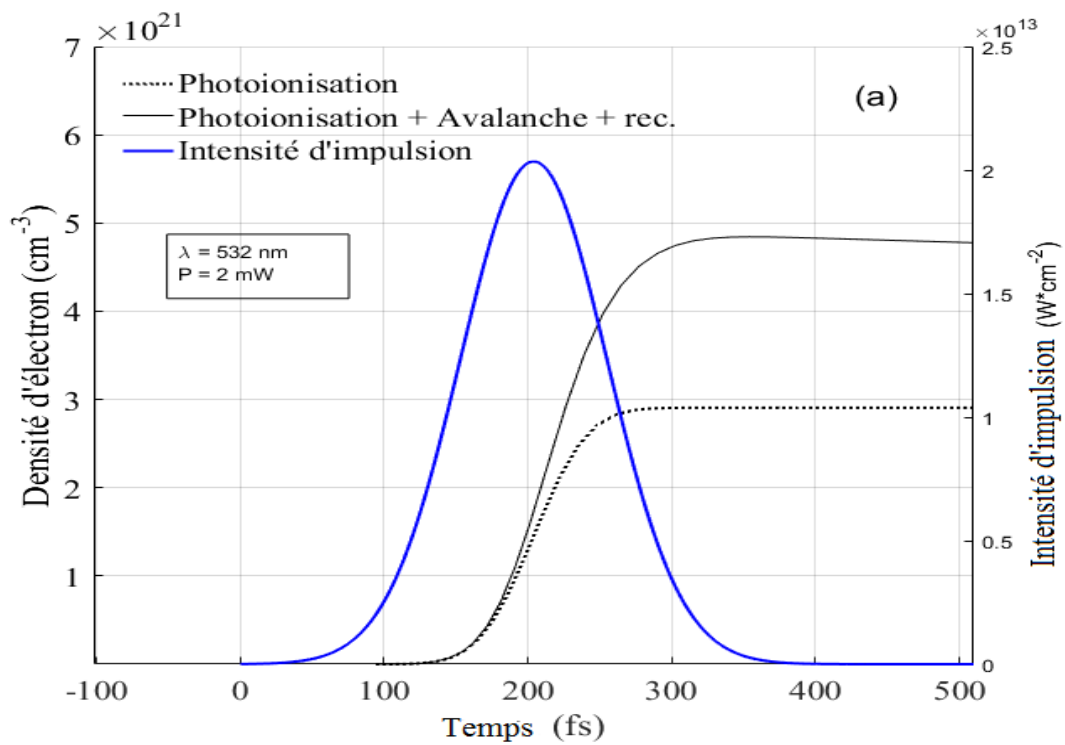


FIGURE 3.3 – Variation temporelle de la densité des électrons libres induite par photo-ionisation (trait discontinu) et par photo-ionisation + avalanche + recombinaison (trait plein) dans le diamant sous impulsion laser de 120 fs à une longueur d'onde  $\lambda = 532 \text{ nm}$  et une puissance laser  $P = 2 \text{ mW}$ . L'intensité de l'impulsion laser est également représentée (trait bleu).

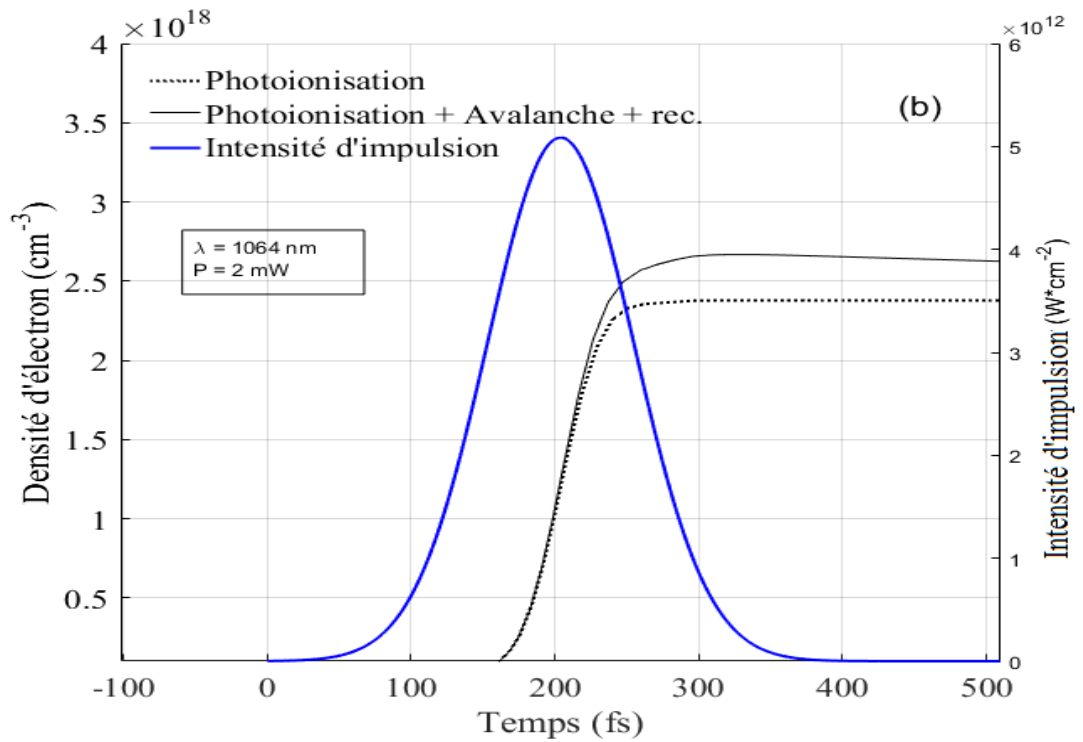


FIGURE 3.4 – Variation temporelle de la densité des électrons libres induite par photo-ionisation (trait discontinu) et par photo-ionisation + avalanche + recombinaison (trait plein) dans le diamant sous impulsion laser de 120 fs à une longueur d’onde  $\lambda = 1064$  nm et une puissance laser  $P = 2$  mW. L’intensité de l’impulsion laser est également représentée (trait bleu).

Pour mieux comprendre la contribution de l’ionisation par avalanche à la densité électronique pour les deux longueurs d’ondes, nous avons fait varier la puissance laser de 0.1 à 10 mW.



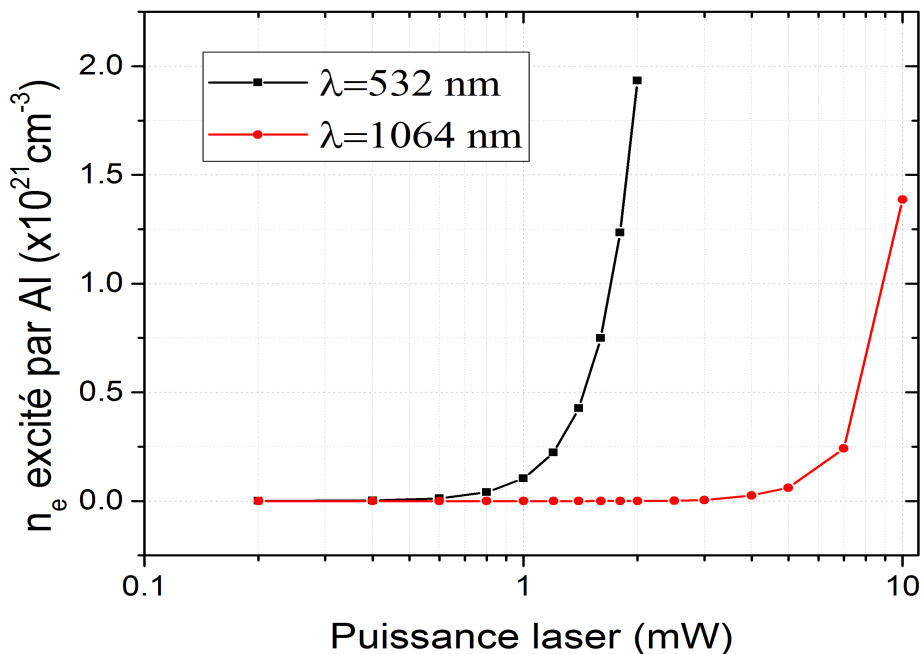


FIGURE 3.5 – Densité des électrons excités par ionisation par avalanche pour les deux longueurs d’onde  $\lambda = 532 \text{ nm}$  (trait noir) et  $\lambda = 1064 \text{ nm}$  (trait rouge) en variant la puissance du laser de 0,1 à 10 mW.

La figure (3.5) représente l’évolution des électrons excités par ionisation par avalanche en fonction de la puissance. On observe que la densité des électrons générés par ionisation par avalanche pour  $\lambda = 532 \text{ nm}$  commence lorsque  $P = 0.6 \text{ mW}$  et elle a considérablement augmenté lorsque la puissance dépasse 1 mW. En revanche, pour  $\lambda = 1064 \text{ nm}$  la génération d’électrons par ionisation par avalanche s’enclenche que pour des valeurs de puissances plus élevées d’ordre de 5 mW donc la densité électronique dans ce cas est essentiellement générée par la photo-ionisation. A cet effet, la plupart des applications telles que fabrication de mirco/nano-structures, la création de circuits opto-électroniques...etc, utilisent un laser femtoseconde avec une longueur d’onde

qui fait partie du domaine spectral de l'infrarouge lointain (par exemple 1064 nm) pour contrôler la précision de la production.

### 3.4 Mode de l'irradiation multi-pulses (*Brust*)

Le perçage du diamant par laser femtoseconde, qui est une application du micro-usinage laser des matériaux transparents, nécessite une puissance laser élevée pour atteindre la température d'ablation critique. L'irradiation laser à un taux de répétition ordinaire (par exemple 250 kHz) induit un effet d'accumulation thermique, dû au plasma d'électrons généré par ionisation par avalanche pendant le temps d'irradiation, par conséquent, l'énergie sera dissipée en dehors du volume focal d'irradiation, augmentant le taux de matière fondue, et en diminuant la précision de l'usinage.

Afin de surmonter ce problème nous avons utilisé d'un mode d'irradiation multi-pulses qui consiste à diminuer le temps qui sépare deux impulsions consécutives, d'où l'augmentation du taux de répétition jusqu'à l'ordre de 2.3 THz, ce qui entraîne une augmentation rapide de la densité électronique (voir la figure 3.6). De cette manière, nous évitons les effets d'accumulation thermique, car l'onde thermique (ensemble de phonons) n'a pas le temps de se propager à l'intérieur du réseau, et l'énergie laser sera déposée sur le même volume focal d'irradiation ; il est donc possible d'obtenir une grande précision d'ablation, comme il a été démontré expérimentalement par *Kerse et al* [17].

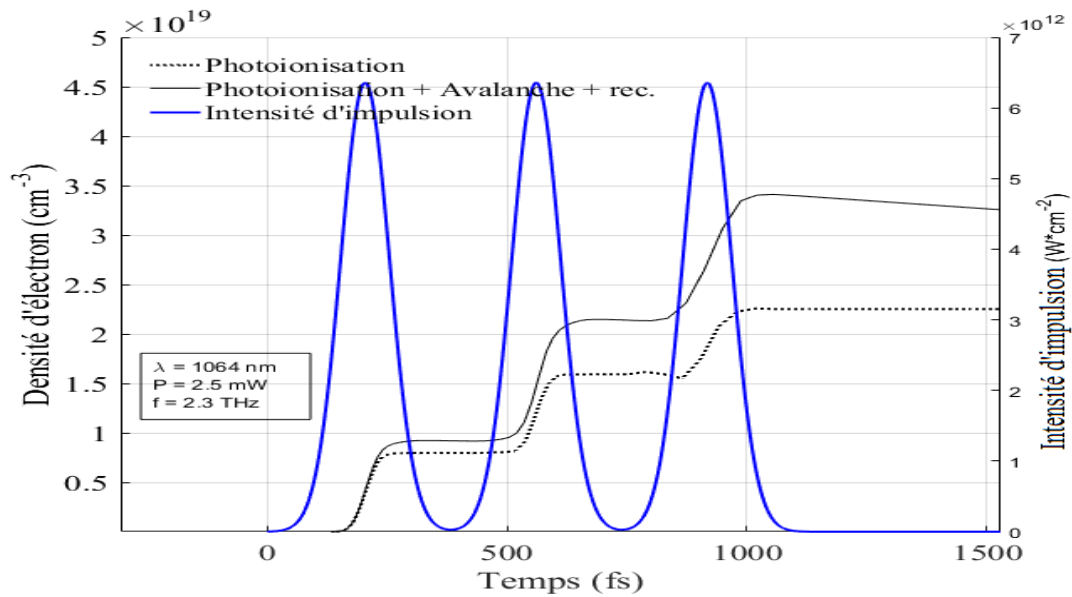


FIGURE 3.6 – Variation temporelle de la densité électronique générée à la surface du diamant par photo-ionisation (trait discontinu) et par photo-ionisation + avalanche + recombinaison (trait plein) sous irradiation de 3 pulses en mode rafale (*Burst*) avec un taux de répétition égale à 2.3 THz, pour une longueur d’onde laser de  $\lambda = 1064$  nm et une puissance  $P = 2,5$  mW. L’intensité de l’impulsion laser est également représentée (trait bleu).

### 3.5 Conclusion

- D’après les résultats obtenus par la simulation de l’ionisation d’un diamant par des impulsions laser  $fs$ , on a constaté que l’origine de l’effet thermique est l’accumulation des électrons due à l’ionisation par avalanche et ce processus devient plus considérable lorsque l’énergie du laser augmente.

- La technique de l’irradiation multi-pulses représente un bonne solution pour surmonter le problème de l’accumulation thermique car les phonons

n'ont pas assez de temps pour se propager à l'intérieur du réseau ce qui améliore la qualité de l'usinage.

de



## Conclusion générale :

Le développement des lasers impulsionnels de nanoseconde jusqu'au femtoseconde a permis d'ouvrir des nouvelles voies dans le domaine de micro/nano-usinage des matériaux transparents .

Ce travail a été consacré à l'étude des mécanismes d'ionisation : photoionisation soit par absorption multi-photoniques soit par effet tunnel et l'ionisation par avalanche connue aussi par l'ionisation par impact car l'ionisation représente l'étape clé de la libération des électrons causant la modification structurelle du matériau. Une compréhension rigoureuse de ces phénomènes est primordiale pour que le résultat du micro/nano-usinage soit précis.

En se basant sur la théorie de *keldysh* qui représente un support dynamique pour suivre l'évolution de la densité d'électrons et permet aussi de déterminer le taux d'ionisation de chaque mécanisme d'ionisation, nous avons distingué, d'après nos calculs, qu'il y a deux régimes ablation induits par les lasers impulsionnels ultracourts : le premier est de faible énergie laser dans lequel l'interaction est considérée comme froide c'est-à-dire absence de transfert thermique et le deuxième de forte énergie laser dans lequel le taux de matière fondue est important.

Le transfert thermique au cours de l'irradiation laser est la conséquence de l'accumulation des électrons générés par l'ionisation par avalanche et nous avons montré que le résultat du micro/nano-usinage devient plus précis lorsqu'on utilise un laser *fs* de longueur d'onde qui appartient au domaine de l'infra-rouge lointin.

Par ailleurs, nous avons montré que le mode de l'irradiance par un système de rafales est une technique qui permet d'éviter l'effet thermique généré par l'accumulation du plasma d'électrons libres, et par voie de conséquence un miro/nano-usinage plus précis.



# Bibliographie

- [1] R.R Gattass and E Mazur. Femtosecond laser micromachining in transparent materials. *Nature photonics*, 2(4) :219–225, 2008.
- [2] M Wang, W Mei, and Y Wang. Simulation of femtosecond laser ablation sapphire based on free electron density. *Optics & Laser Technology*, 113 :123–128, 2019.
- [3] O Boultif. *Modelisation de l'interaction d'une impulsion laser ultra-courte avec un diélectrique*. PhD thesis, Batna, Université El-hadj Lakhdar. Faculté des Sciences, 2012.
- [4] Jessica Bousquet. a densité électronique générée par ionisation dépend fortement de la durée de l'impulsion du laser incident propriétés optiques et électroniques du diamant fortement dopé au bore. *Université Grenoble Alpes*, pages fftel–01281463f, 2015.
- [5] C Momma, S Nolte, B N Chichkov, F v Alvensleben, and A Tünnermann. Precise laser ablation with ultrashort pulses. *Applied surface science*, 109 :15–19, 1997.
- [6] C Delsart. *Lasers et optique non linéaire : cours, exercices et problèmes corrigés : niveau M1-M2*. Ellipses, 2008.
- [7] José-P Pérez and M Françon. *Optique : fondements et applications avec 200 exercices et problèmes résolus/J.-P. Pérez ; préf. de Maurice Fran-*

- çon*. Masson, 2000.
- [8] M B Taouti. *Synthèses et caractérisations structurales d'iodates métalliques, matériaux lasers convertisseurs de fréquences*. PhD thesis, Université Joseph Fourier-Grenoble I, 2008.
- [9] B N Chichkov, C Momma, S Nolte, F V Alvensleben, and A Tünnermann. Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids. *Applied physics A*, 63 :109–115, 1996.
- [10] A Abdelmalek. *Étude théorique et expérimentale de la micro/nanoablation et la micro/nanostructuration des matériaux par laser ultracourt*. PhD thesis, Université de Abou-Bekr Belkaid–Tlemcen, 07/03/2020.
- [11] V Gruzdev. Fundamental mechanisms of laser damage of dielectric crystals by ultrashort pulse : ionization dynamics for the keldysh model. *Optical Engineering*, 53(12) :122515–122515, 2014.
- [12] D Von der Linde, K Sokolowski-Tinten, and J Bialkowski. Laser–solid interaction in the femtosecond time regime. *Applied Surface Science*, 109 :1–10, 1997.
- [13] D Savastru, R Savastru, S Miclos, and II Lancranjan. Simulation of laser induced absorption phenomena in transparent materials. *Optics and Lasers in Engineering*, 110 :288–295, 2018.
- [14] T Hocquet. *Physique des transports (théorie classique)*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, 2016.
- [15] F Bireche. *Modèle à deux températures pour l'étude de l'ablation du molybdène par impulsion laser femtoseconde*. PhD thesis, UMMTO, 2015.

- [16] A Abdelmalak, A Sari, Z Bedrane, and M Girolami. Ultrafast ionization of transparent materials under femtosecond laser irradiation. *Optica Advanced Photonics Congress 2023, Technical Digest Series (Optica Publishing Group, 2023)*, paper in progress, 2023.
- [17] C Kerse, H Kalaycıođlu, P Elahi, B etin, D.K Kesim, nder Akaalan, S Yavař, M.D Ařık, B ktem, H Hoogland, et al. Ablation-cooled material removal with ultrafast bursts of pulses. *Nature*, 537(7618) :84–88, 2016.

## Résumé

Les impulsions lasers ultracourtes sont particulièrement pertinentes pour le micro/nano-usinage des matériaux et suscitent l'intérêt des chercheurs où le but ultime pour les expérimentateurs reste comment augmenter la précision de fabrication et l'efficacité du produit. La maîtrise des procédés est donc un passage obligé et une meilleure compréhension des mécanismes d'interaction, à savoir l'absorption, l'ionisation non-linéaire, le transfert d'énergie et la diffusion thermique peut grandement aider cette démarche de contrôle des procédés. L'objectif de ce mémoire de master est de présenter une étude des processus fondamentaux induits lors de l'interaction laser fs avec un matériau transparent (le diamant). On s'intéresse principalement aux processus responsables de l'effet thermique induit lors du passage d'un régime de basse fluence à un régime de haute fluence et aux mécanismes associés. Ce travail contribue au développement du concept de technique de traitement au laser pour mieux contrôler et améliorer les applications au secteur industriel.

## Abstract

Ultrashort laser pulses are particularly relevant for micro/nano machining of materials and are of interest to researchers where the ultimate goal for experimenters remains how to increase manufacturing accuracy and product efficiency. Process control is therefore mandatory and a better understanding of the interaction mechanisms, namely absorption, non-linear ionization, energy transfer and thermal diffusion can greatly help this process control approach. The objective of this master's thesis is to present a study of the fundamental processes induced during the fs laser interaction with a transparent material (diamond). We are mainly interested in the processes responsible for the thermal effect induced during the transition from a low fluence regime to a high fluence regime and the associated mechanisms. This work contributes to the development of the concept of laser processing technology to better control and improve applications in the industrial sector.

## ملخص

نبضات الليزر فائقة القصر ذات صلة خاصة بآليات الدقيقة / النانوية للمواد وتحظى باهتمام الباحثين حيث يظل الهدف النهائي للمجربين هو كيفية زيادة دقة التصنيع وكفاءة المنتج. وبالتالي فإن التحكم في العملية إلزامي ويمكن أن يساعد فهم آليات التفاعل بشكل أفضل، أي الامتصاص والتأين غير الخطي ونقل الطاقة والانتشار الحراري بشكل كبير على نهج التحكم في العملية. الهدف من أطروحة الماجستير هو تقديم دراسة للعمليات الأساسية التي تحدث أثناء تفاعل ليزر الفييمتو ثانية مع مادة شفافة (الماس). نحن مهتمون بشكل أساسي بالعمليات المسؤولة عن التأثير الحراري الناجم أثناء الانتقال من نظام التدفق المنخفض إلى نظام التألق العالي آليات المرتبطة به. يساهم هذا العمل في تطوير مفهوم تقنية المعالجة بالليزر لتحسين التحكم وتحسين التطبيقات في القطاع الصناعي.