

**République Algérienne Démocratique et Populaire**  
**Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique**  
**Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediene**  
**Faculté de PHYSIQUE**



**MEMOIRE**

**Présenté pour l'obtention du diplôme de MAGISTER**

**En : Physique**

**Spécialité : Electronique Quantique**

**Par : Yahiaoui Kenza**

**Thème**

Mise en évidence de l'explosion de phase lors de  
l'interaction d'un faisceau laser avec une cible  
solide

Soutenu publiquement le 21/03/2009, devant le jury composé de :

<b>Mr. A.Bendib</b>	<b>Professeur à l'USTHB</b>	<b>Président</b>
<b>Mr. T.Kerdja</b>	<b>Maître de Recherche au CDTA</b>	<b>Directeur de Mémoire</b>
<b>Mr. O.Ziane</b>	<b>Professeur à l'USTHB</b>	<b>Examineur</b>
<b>Mr. A. Kellou</b>	<b>Professeur à l'USTHB</b>	<b>Examineur</b>
<b>Mme. S.Messaci</b>	<b>Maître de Recherche au CDTA</b>	<b>Examinatrice</b>

*A mes parents,*

*A ma fille Sabine,*

*A mes neveux Paris et Ahmed.*

## Remerciements

Je tiens à remercier Monsieur le Professeur Abdelrazek Bendib qui a bien voulu être le président de mon jury.

Je remercie également Madame Samira Messaci et Messieurs Abdel Hamid Kellou et Omar Ziane d'avoir accepté de faire partie du jury.

Cette étude a été effectuée au laboratoire Interaction Laser Matière du Centre de Développement des Technologie Avancées (CDTA), sous la direction de Monsieur Tahar Kerdja qui a suivi le déroulement de ce travail. Je suis heureuse de lui témoigner ici mon attachement et ma reconnaissance pour l'efficacité et la bienveillance avec laquelle il a constamment encouragé ce travail. Il a toujours su me guider lors de mes moments de doute par des choix techniques et scientifiques adaptés. Je l'en remercie sincèrement. J'ai été très marquée par ses qualités professionnelles et humaines. Qu'il trouve ici, l'expression de ma profonde gratitude.

Je voudrais remercier également Monsieur Smail Malek qui a contribué à la mise en œuvre du montage expérimental. Ainsi que tous les travailleurs de l'atelier mécanique au niveau du CDTA, pour les nombreuses pièces usinées et utilisées pour ce montage expérimental. Par la même occasion je remercie Madame Yasmine Belaroussi du service de caractérisation au niveau du CDTA pour les analyses effectuées avec le MEB.

Je voudrais remercier chaleureusement tous mes collègues du CDTA particulièrement mes amis : Nadia Saoula, Samira Djerourou, Sabrina Messaoud Aberkane, Hania Djani, Yasmine Belaroussi, Slimane Lafane et Fateh Almabouada.

Il est difficile d'exprimer en peu de mots ma gratitude envers mes parents, pour leurs encouragements et pour les sacrifices auxquels ils ont consenti en prenant soin de ma fille. Ils m'ont permis ainsi de continuer mes études, qu'ils retrouvent en ses quelques mots toute ma reconnaissance. Je n'oublie pas de remercier de même mes frères Réda et Oussama, ma sœur Nesrine et ma belle sœur Sarah pour leurs soutiens et leurs encouragements.

J'aimerais aussi m'excuser des éventuels oublis auprès des personnes qui ne sont pas citées.

# *Table des Matières*

## **Table des Matières**

<b>Introduction générale</b> .....	1
------------------------------------	---

### **Chapitre I - Ablation Laser**

Introduction .....	6
I-1 Ablation laser .....	6
I-1 1. Introduction .....	6
I-1 2. Interaction Laser Matière .....	10
I-1 3. Evaporation de la matière .....	19
I-1 4. Formation du plasma, interaction entre la vapeur et le faisceau laser.....	22
I-1 5. Expansion du plasma .....	27
I-2 Ejection de particules lors de l'ablation laser .....	29
I-2 1. Interaction entre un laser U.V et une cible solide à haut flux laser.....	29
I-2 2. Les effets thermiques.....	29
a) L'évaporation normale .....	29
b) L'ébullition normale .....	30
c) L'explosion de phase .....	31
d) Chauffage en volume .....	32
I-2 3. L'explosion de phase .....	35
I-2 4. Estimation de la température thermodynamique critique.....	41
I-2 5. Mécanismes supplémentaires d'éjection de particule par PLD.....	42
I-2 6. Particules éjectées, comment les empêcher ?.....	43
I-3 Conclusion.....	43

### **Chapitre II- Dispositif Expérimental**

Introduction .....	46
II-1 Le Laser " source d'excitation".....	46
II-1 1. Introduction .....	46
II-1 2. Le Laser YG 980.....	46
II-1 3. Propriété du Laser YG 980 .....	49
II-1 4. Etalonnage du laser.....	51

II-2 La chambre à cible .....	54
II-3 La balance à quartz Intellmetrics IL150 .....	55
II-3 1.Introduction .....	55
II-3 2. Description et théorie de la IL 150 .....	55
II-3 3.Utilisation d'une balance à quartz .....	57
II-4 Collecteur de charge .....	59
II-5 Microscope électronique à balayage, microscope optique et profilomètre .....	66
• <i>Microscope électronique à balayage</i> .....	66
• <i>Microscope optique et profilomètre</i> .....	67
II-6 Conclusion .....	68

## **Chapitre III- Résultats & Discussion**

Introduction .....	70
III-1 Mesures avec la balance à quartz et le microscope optique à réflexion.....	70
III-1 1.Introduction .....	70
III-1 2.Resultats obtenus .....	73
III-2 Morphologie des impactes par imagerie MEB .....	78
• Cible de silicium .....	78
• Cible de titane .....	81
• Cible de tungstène .....	85
• Cible de zirconium .....	88
III-3 Profil des impactes .....	92
III-4 Mesures avec un collecteur de charge .....	93
III-4 1.Courant, énergie cinétique et nombre d'ions .....	94
• Cible de tungstène .....	94
• Cible de zirconium .....	97
III-4 2.Estimation de la température de surface .....	99
• Cible de carbone .....	102
• Cible de silicium .....	102
• Cible de titane .....	103
• Cible de tungstène .....	103
• Cible de zirconium .....	104

III-5 Conclusion .....	105
<b>Conclusion générale</b> .....	107
<b>Annexe</b> .....	111
<b>Bibliographie</b> .....	116

# *Introduction Générale*

## **Introduction générale**

Après avoir établi les bases théoriques du laser au début du siècle, Albert Einstein avait postulé l'existence de l'émission stimulée. Il a fallu encore 50 ans pour que le premier laser voit le jour (le laser à Rubis). Depuis, étant d'un grand intérêt pour les industriels et les scientifiques, les applications des lasers ont rapidement évolué (soudage, découpe, dépôt de couche mince, séparation isotopique, télécommunications...).

De nombreux travaux expérimentaux et théoriques ont été effectués dans le but de comprendre le processus d'interaction laser matière ainsi que les mécanismes d'initiation et de propagation du plasma produit par laser. Une grande partie de ces travaux était axée sur la production de plasmas denses et chauds en vue de la réalisation de la fusion thermonucléaire. La technologie des lasers a évolué et parallèlement, l'extension des champs d'applications du plasma formé par laser, et plus particulièrement l'application des plasmas formée par ablation laser pour le dépôt de couche mince et ceci depuis l'apparition au milieu des années quatre vingt des lasers à courte longueur d'onde (excimère) et à haute cadence de tir.

Lorsqu'une couche mince est déposée sur un matériau massif, elle lui confère toutes ses propriétés en surface, sans changer les propriétés du matériau massif. En déposant par exemple une fine couche de nitrure, connue pour ses caractéristiques de dureté, sur un matériau ductile à cœur, nous obtiendrons une pièce avec les mêmes propriétés physique que les nitrures tout en gardant le caractère ductile du matériau cœur. L'intérêt des matériaux en couches minces n'est plus à démontrer du fait des nombreux domaines d'applications, on cite par exemple l'application des couches minces en microélectronique, en métallurgie, pour la décoration et cela pour leurs paramètres électriques, magnétiques, optiques, tribologiques, anticorrosives, décoratives ....

De nombreuses méthodes sont couramment utilisées pour déposer un matériau en couche mince [1] :

- Les méthodes physiques (Physical Vapor Deposition (PVD)) incluant l'évaporation sous vide, la pulvérisation ionique (qui se fait à basse température).
- Les méthodes chimiques (Chemical Vapor Deposition (CVD)) incluant le dépôt en phase vapeur (réaction chimique entre l'atmosphère et le substrat).
- Les méthodes de dépôt par plasma telle que les torches (plasma thermique) ou le dépôt par pulvérisation cathodique.
- Le dépôt électrolytique.
- Les dépôts par jet moléculaire (MBE).

Ces méthodes ont vu le développement de quelques variantes comme, la CVD assistée par plasma (PACVD), le dépôt assisté par évaporation laser (LAPVD).

La technique de dépôt utilisant un laser a connu un début timide dès l'apparition des lasers, mais, les taux de répétition des tirs lasers (une fraction du Hertz) et les nombreux problèmes aussi bien théoriques qu'expérimentaux à résoudre ont fait que cette méthode n'a pas connu d'évolution significative, les efforts de recherche étant surtout centrés sur la fusion par confinement inertiel.

A l'heure actuelle le dépôt de couches minces par ablation laser est devenue une voie prometteuse du fait qu'elle permet d'obtenir des matériaux très divers (pour la microélectronique, les capteurs, le biomédical, la décoration.....) mais aussi des matériaux à stoechiométrie complexes qui ne sont obtenus par aucune autre méthode, l'exemple le plus couramment cité est le supraconducteur (YBaCuO) déposé en couches minces par ablation d'une cible composite obtenue par compactage d'un mélange de trois oxydes. Ce sont ces nombreux avantages qui font le succès de cette méthode.

Cette technique consiste à focaliser un faisceau laser sur une cible solide en rotation qui se trouve dans une chambre sous vide ou à faible pression d'un gaz résiduel (de 5 à 10 Pa). La cible s'évapore, formant ainsi une vapeur qui s'ionise et produit un plasma luminescent. Ce plasma transporte les espèces évaporées et ionisées de la cible vers un substrat où elles se déposent. Une couche mince se forme alors sur le substrat.

Cependant, la technologie des dépôts par ablation laser, contrairement aux autres méthodes conventionnelles, n'a pour l'instant pas pu investir le domaine industriel, du fait notamment de la taille des substrats utilisables, de la complexité des phénomènes mis en jeu et de nombreux problèmes encore à résoudre. Ce sont des conditions essentielles à éclaircir pour rendre un procédé industriel. De plus, la formation de gouttelettes qui viennent se déposer sur la couche et lui font perdre ses qualités structurales est un problème resté longtemps incompris.

Pour que la technique de dépôt par ablation laser soit reproductible, il faut maîtriser le procédé par des études approfondies sur les phénomènes physico-chimiques mis en jeu à chaque étape de ce procédé.

Ainsi il est essentiel d'étudier et de comprendre les différentes étapes impliquées dans la technique de dépôt par ablation laser à savoir :

- L'interaction laser matière.
- La formation du plasma.
- Le transport des espèces de la cible au substrat.
- La formation de la couche mince sur le substrat.

Le phénomène d'interaction laser matière est étudié dans notre équipe depuis plus d'une dizaine d'année afin de mettre en évidence les mécanismes fondamentaux d'interaction entre le laser et le matériau et de formation du plasma [2-8]. Plus particulièrement, l'étude du plasma créé par ablation laser sous vide ou en présence d'un gaz, par spectroscopie d'émission résolue dans le temps et dans l'espace pour l'élaboration de couches minces, a été l'objet d'intenses recherches dans notre laboratoire [7, 8]. Les couches minces élaborées par ce procédé de dépôt ont présenté à partir d'un certain flux laser, des gouttelettes sur la couche mince. La compréhension des mécanismes responsables de l'apparition des gouttelettes s'avère une étape importante pour pouvoir diminuer leur densité sur les couches minces, voir les supprimer totalement.

Il est reconnu que lorsque le flux laser dépasse la valeur de  $10^{10} \text{W/cm}^2$ , quatre phénomènes thermiques sont alors à considérer [9-13] :

- L'évaporation normale.
- L'ébullition normale.
- L'explosion de phase.
- Le chauffage en volume.

Ces quatre phénomènes thermiques peuvent se produire en même temps sur une même cible ou séparément suivant les paramètres du laser (durée d'impulsion laser, fluence laser) et les paramètres physico-chimique du matériau cible.

C'est pour améliorer la qualité de la couche mince obtenue par ablation laser et cela par optimisation du procédé d'ablation par laser que s'inscrit le présent travail.

Pour cela une gamme de flux laser de  $10^8 \text{W/cm}^2$  à  $10^{11} \text{W/cm}^2$  a été utilisée et cela lors de l'ablation par un laser Nd:YAG triplé en fréquence sur cinq cibles ablatées séparément. Trois de ces cibles sont métalliques (titane, zirconium et tungstène), une cible semi-conductrice (silicium) et enfin une cible semi métallique (graphite).

Le manuscrit sera structuré comme suit :

Le premier chapitre divisé en deux parties dont la première abordera la description de l'ablation laser en commençant par l'interaction entre le laser et la cible solide jusqu'à la formation et l'expansion du plasma. La deuxième partie de ce chapitre sera consacrée à la description de l'interaction entre un laser à haut flux avec une cible solide ainsi qu'à quelques mécanismes physiques pertinents dans ces expériences.

Le second chapitre sera consacré à la description détaillée des différents éléments du dispositif expérimental ainsi qu'aux différents outils de diagnostic utilisés (microbalance à quartz, collecteur de charge, microscope électronique à balayage, microscope optique à réflexion et profilomètre).

Un troisième chapitre sera consacré aux résultats obtenus par divers outils de diagnostics et à leur interprétation

Enfin nous résumerons les principaux résultats de ce mémoire dans une conclusion générale.

*CHAPITRE I*  
*Ablation Laser*

## **Introduction**

Ce chapitre est consacré à l'ablation laser qui est une technique expérimentale utilisée pour le dépôt de couche mince.

Nous commencerons par décrire les différents phénomènes qui se produisent lors de l'interaction d'une cible solide avec un rayonnement laser, de l'évaporation de celle-ci jusqu'à la formation de la couche mince sur le substrat. Nous allons décrire plus particulièrement l'interaction laser - matière et les transformations que subit le matériau cible.

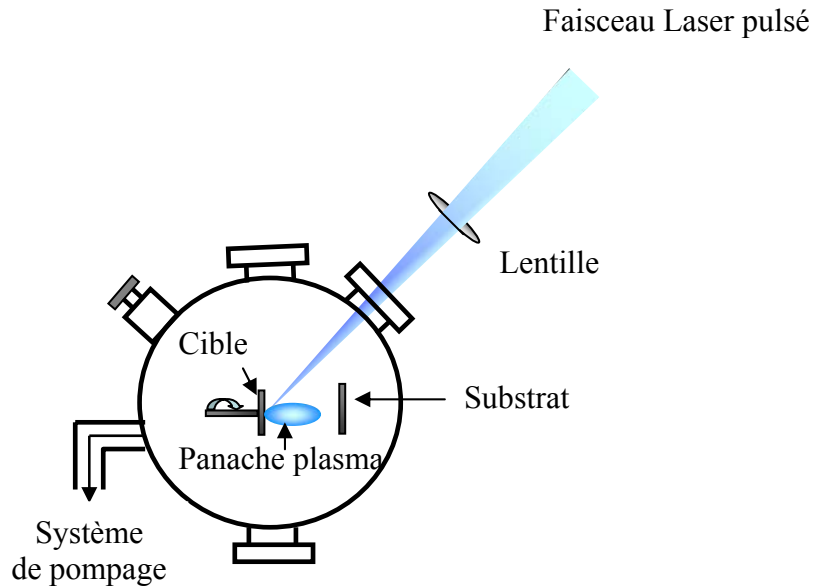
A partir de cela, nous allons nous intéresser à l'interaction de la matière avec un laser à haute intensité. Dans ce cas, nous nous focaliserons sur les phénomènes qui se produisent, et qui constituent l'objet de nos travaux.

### **I-1 Ablation laser**

#### **I-1 1. Introduction**

Le dépôt de couches minces par ablation laser a été mis en œuvre pour la première fois en 1965 par Smith et Turner [14], ensuite il s'est développé vers la fin des années quatre vingt comme une méthode adaptée au dépôt de couches de matériaux divers. Cette technique est expérimentalement simple à réaliser et consiste à focaliser un faisceau laser pulsé (la durée de l'impulsion laser notée  $\tau$  est comprise entre  $10 < \tau < 50$  ns) sur une cible solide en rotation, placée dans une enceinte sous vide poussé ou sous ambiance gazeuse (figure (I-1)). La particularité de cette technique est le fait que les particules évaporées sont chauffées à des températures de l'ordre de quelques électron-volts ( $1\text{eV} \sim 10^4\text{K}$ ), elles deviennent fortement ionisées et forment un plasma à haute pression qui se détend alors au sein de la chambre d'ablation. Les divers constituants du plasma se déposent finalement sur un substrat placé face à la cible (figure (I-2)).

Les lasers les plus couramment utilisés pour le procédé d'ablation laser sont les lasers excimères ou les lasers Nd :YAG triplés ou quadruplés en fréquence, et cela pour leur courte longueur d'onde et durée d'impulsion qui donnent un meilleur couplage entre le rayonnement laser et le matériau cible.



**Figure (I-1) :** Schéma de principe d'une expérience d'ablation

L'interaction d'un laser avec la matière dépend aussi bien des propriétés du laser telles que sa puissance, sa durée d'impulsion et sa longueur d'onde, que des propriétés optiques et thermodynamiques de la cible. L'ablation avec un laser nanoseconde est considérée comme un processus thermique, mécanique, photo physique ou photochimique.

Dans le cas d'un laser émettant dans l'ultraviolet (UV) avec une durée d'impulsion de quelques dizaines de nanosecondes, l'interaction est considérée comme étant thermique pour les métaux lorsque la température de la cible est suffisamment élevée, de façon à ce que l'émission thermoionique l'emporte sur l'émission photoélectrique.

Soit  $I_{vap}$  la densité de puissance seuil menant à la vaporisation du matériau (de l'ordre d'une dizaine de  $MW/cm^2$ ),  $I_a$  la densité de puissance seuil d'amorçage du plasma supérieure à  $I_{vap}$  et  $I_0$  la densité de puissance incidente du laser, suivant la valeur de  $I_0$ , trois domaines de densité de puissance sont distingués:

- Lorsque  $I_0 < I_{vap}$  : le mécanisme prédominant est le chauffage de la surface du matériau.
- Lorsque  $I_{vap} \leq I_0 \leq I_a$  : la matière est ablatée, mais aucun plasma n'est encore formé.
- Lorsque  $I_0 \geq I_a$  : la densité de puissance laser est alors suffisante pour former un plasma à la surface du solide.

L'ablation laser pour le dépôt de couches minces s'effectue dans une gamme de densité de puissance allant de  $10^8$  W/cm<sup>2</sup> à quelques  $10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>.

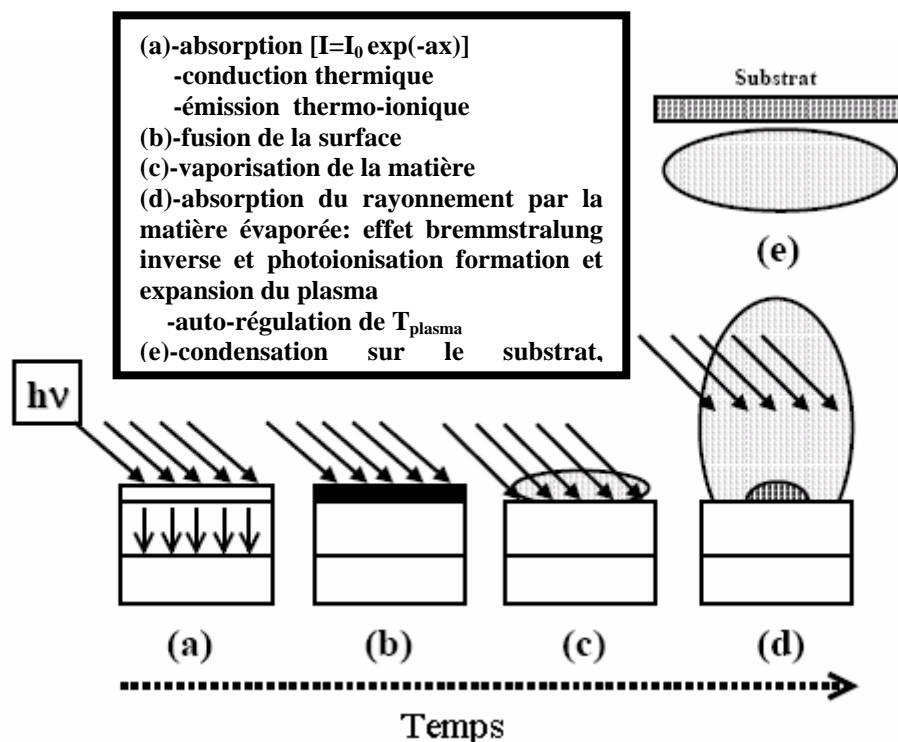
Dans le dépôt de couches minces par ablation laser, trois phases successives sont considérées (figure (I-2)) :

- Interaction du laser avec la matière (cible et vapeur) et la formation du plasma.
- L'expansion du plasma et le transport des espèces de la cible au substrat.
- La formation de la couche sur le substrat.

La technique de dépôt de couches minces par ablation laser possède différents avantages qui la distinguent des différentes méthodes de croissance de films (par voie chimique (CVD) ou physique (PVD), MBE, pulvérisation...) et fournit des avantages pour la croissance des oxydes et des multiéléments. Parmi ces avantages, nous citerons :

- **Un transfert stoechiométrique du matériau cible vers le substrat** : Ceci est lié à la durée de l'impulsion laser qui est de l'ordre de la nano seconde, ce qui conduit à un chauffage thermique de courte durée et par conséquent la matière est évaporée dans le même rapport stoechiométrique que la cible ablatée. Chaque constituant d'une cible composée a une température d'évaporation. Lors de l'interaction laser, la cible subit un chauffage rapide permettant aux différents constituants de la cible de s'évaporer en même temps. Aucune autre méthode de dépôt ne possède cette propriété.
- **Obtention d'espèces énergétiques** : La vitesse élevée des atomes neutres et des ions (de l'ordre de 10 à 100 eV) favorise la cristallisation de la couche déposée.
- **Croissance d'hétéro structures épitaxiales multicouches** : Les couches en dépôt montrent une structure cristalline continue (pas d'interface).
- **Possibilité de dépôt réactif dans une ambiance gazeuse** : L'ablation laser réactive est par opposition à l'ablation laser non réactive (sous vide ou en présence de gaz inerte), est l'ablation laser d'une cible avec l'injection d'un ou plusieurs gaz réactifs à l'intérieur de l'enceinte. Le gaz ambiant peut interagir avec la surface de la cible lorsqu'elle est irradiée par le laser, ou bien en phase gazeuse avec le panache plasma, ou enfin avec la surface du film en croissance.

Nous ne pouvons citer les avantages de cette technique, sans citer ses inconvénients. Les inconvénients majeurs du procédé de dépôt par laser pulsé sont les faibles dimensions des échantillons (les substrats) et la non uniformité du dépôt sur de grandes surfaces, du fait que le panache plasma est très directif. Ajouté à cela, la présence de particules sur les couches minces déposées qui se répercute sur la qualité de cette couche. La présence de débris et de gouttelettes sur les couches minces constitue une entrave majeure à l'industrialisation de ce procédé. Néanmoins, le contrôle de la quantité et surtout de la taille de ces gouttelettes peut s'avérer un excellent procédé de production de micro et nano particules. Ceci passe par une meilleure compréhension des processus physiques responsables de leur création, notamment la cinétique des bulles de vapeur dans le bain fondu et la thermodynamique du milieu dans des conditions extrêmes.



**Figure (I-2) :** Illustration des étapes successives du mécanisme d'ablation et de dépôt par un laser pulsé

Nous nous intéresserons dans le présent travail à l'interaction du laser avec le matériau à ablater et plus particulièrement aux modifications thermodynamiques du matériau et la formation du plasma. Par conséquent nous n'allons pas détailler les autres phases impliquées dans le dépôt de couche minces par ablation laser.

## **I-1 2. Interaction Laser Matière**

Lorsque un rayonnement laser est focalisé sur la surface d'une cible, une partie est réfléchiée par la surface, et l'autre partie absorbée par la cible. La valeur du coefficient de réflexion  $R$  dépend de la fréquence de l'onde électromagnétique et de l'état de surface de la cible et des propriétés physico chimique de la cible.

L'absorption du rayonnement par le matériau constituant la cible est décrite par la loi de Beer-Lambert, donnée par:

$$I(z) = I_0(1 - R)e^{-\alpha z} \quad (I - 1)$$

Où :  $I(z)$  est l'intensité de l'onde à la profondeur  $z$ .

$I_0$  est l'intensité de l'onde incidente.

$R$  est le coefficient de réflexion du matériau cible qui dépend de la longueur d'onde.

$\alpha$  est le coefficient d'absorption du matériau cible qui dépend aussi de la longueur d'onde notée  $\lambda$  et du coefficient d'extinction  $k$  du matériau cible, suivant la relation suivante :

$$\alpha = \frac{4\pi k}{\lambda} \quad (I - 2)$$

L'absorption se fait sur une profondeur caractéristique  $\delta$  appelée aussi épaisseur de peau ou profondeur d'absorption, donnée par :

$$\delta = \frac{1}{\alpha} \quad (I - 3)$$

A 355 nm, longueur d'onde à laquelle ce travail a été effectué, et correspondant à la troisième harmonique de l'émission d'un laser Nd-YaG, les coefficients de réflexion, d'absorption, l'épaisseur de peau et l'indice d'extinction, pour les matériaux cible utilisés [15-17], sont donnés par le tableau suivant :

Cible	k	$\alpha$ ( $10^6 \times \text{cm}^{-1}$ )	$\delta$ ( $10^{-6} \times \text{cm}$ )	R (%) à 298 K
Carbone (graphite) (C)	1,27*	0,15 *	6,66*	18,3
	0,19**	0,1**	10**	
Silicium (Si)	3,014	1,06	0,94	57,5
Titane (Ti)	2,01	0,71	1,40	44,3
Tungstène (W)	2,7	0,95	1,04	48,8
Zirconium (Zr)	0,75	0,26	3,84	1,3

Pour le carbone (graphite) les données tabulées sont pour :

\*une énergie du photon de 1eV [15]

\*\* 5eV [16]

**Tableau (I-1) :** La profondeur d'absorption, le coefficient d'absorption et le coefficient d'absorption pour les cibles de C [15-17], Si, Ti, W et Zr [17]

Pour la cible de carbone, il ne nous a pas été possible de trouver des coefficients d'extinction pour une longueur d'onde du photon de 355nm. Les valeurs rapportées au tableau(I-1) sont pour des photons de longueur d'onde de 1064nm (soit une énergie de 1eV) et de longueur d'onde de 248nm (soit une énergie de 5eV).

Pour toute sorte de cible, l'absorption se fait essentiellement par le biais des électrons libres.

- Pour les métaux, l'absorption s'initie directement avec les électrons de conduction initiaux.
- Pour les semi-conducteurs, les électrons libres sont créés lorsque l'énergie du photon dépasse la largeur de la bande interdite. Les électrons passent ainsi de la bande de valence à la bande de conduction soit par absorption d'un photon ou par absorption multi photonique.
- Pour les isolants, il s'agira de claquage (optical breakdown). Un isolant possède peu de charges libres, elles y sont piégées, contrairement à un matériau conducteur. C'est par claquage (effet d'avalanche) que les électrons sont libérés.

Une fois les électrons libres créés, le transfert d'énergie se fait comme pour une cible métallique : le transfert de l'énergie se fait par bremsstrahlung inverse lors des collisions entre les électrons libres et les atomes, en présence de l'onde laser. Le temps de relaxation est de l'ordre de la picoseconde, inférieur à la durée de l'impulsion laser qui est de l'ordre de la nanoseconde "cas du laser utilisé expérimentalement". Ainsi l'énergie absorbée est transformée en vibration du réseau sous forme de chaleur qui se propage dans le matériau.

Durant la durée de l'irradiation, la chaleur se propage sur une distance égale à la longueur de diffusion thermique définie par :

$$\delta_{th}=2(D\tau)^{1/2} \quad (I-4)$$

Où  $D$  : le coefficient de diffusion thermique, donné par  $D=K_{th}/(\rho C_p)$ , où  $K_{th}$  la conductivité thermique,  $\rho$  la densité du matériau et  $C_p$  est la chaleur spécifique.

$\tau$  : durée de l'impulsion laser

Cible	Température d'ébullition (K) [17]	$D$ (cm <sup>2</sup> .s <sup>-1</sup> )	$\delta_{th}$ (10 <sup>-6</sup> × cm)
Carbone (graphite) (C)	4300	$5 \times 10^{-2}$ *	709
		12,58**	44,7
Silicium (Si)	3174	0,85	184
Titane (Ti)	3560	0,094	61
Tungstène (W)	5828	0,65	50
Zirconium (Zr)	4682	0,12	69

Pour le carbone (graphite) les données tabulées sont pour :

\* de la référence [16]

\*\* de la référence [18]

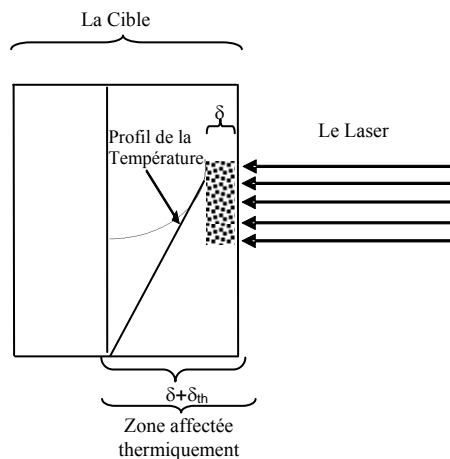
**Tableau (I-2) :** Coefficient de diffusion thermique et longueur de diffusion thermique [18] pour les cibles de C, Si, Ti, W et Zr

Si les dimensions de la surface irradiée sont beaucoup plus grandes que la longueur de diffusion thermique  $\delta_{th}$ , la propagation de la chaleur dans le matériau peut être décrite par la théorie linéaire de la conduction.

Pour les lasers nanoseconde et des cibles métalliques, semi-métalliques et semi-conductrices la condition  $\delta_{th} \gg \delta$  est satisfaite ("Tableau (I-1)" et "Tableau (I-2)"), car  $\delta_{th}$  dépend de la durée de l'impulsion laser. L'évaporation se produit quand l'énergie laser

absorbée (par unité de volume) devient plus grande que l'énergie nécessaire pour porter le matériau à température d'évaporation plus la chaleur latente d'évaporation.

Dans le cas des lasers nanosecondes, l'énergie absorbée chauffe le matériau jusqu'au point de fusion ensuite jusqu'à la température d'évaporation du matériau en question. L'évaporation se fait à partir de la cible à l'état liquide, l'énergie se propage dans la cible par conduction de chaleur (figure (I-3)).



**Figure (I-3) :** Représentation schématique de l'absorption d'un rayonnement laser par un matériau

La température de surface de la cible irradiée par un laser nanoseconde s'autorégule. Pour expliquer cela, on se place dans le cas où la cible a atteint l'évaporation donc la température de surface est la température d'évaporation. Les particules quittent la cible sous forme de gaz qui se détend. Le faisceau laser interagit alors avec une couche de matériau "frais", qui sous l'effet de l'absorption, atteint la température d'évaporation, puis s'évapore à son tour. La température de surface est ainsi régulée par le simple effet de l'absorption-évaporation.

Le processus d'évaporation est souvent décrit en utilisant l'équation du flux de chaleur à une dimension où le profil de la température induit par une impulsion laser sera obtenu en résolvant l'équation de diffusion de la chaleur à une dimension, donnée par :

$$C_p \rho \frac{\partial T(z,t)}{\partial t} = G(z,t) + \frac{\partial}{\partial z} (K_{th} \frac{\partial T(z,t)}{\partial z}) \quad (I-5)$$

Où  $T(z,t)$  : la température à la position  $z$  et à l'instant  $t$ .

$C_p$  : Chaleur spécifique du matériau [ $J.kg^{-1}.K^{-1}$ ].

$\rho$  : Densité du matériau [ $kg.m^{-3}$ ].

$K_{th}$  : Conductivité thermique du matériau [ $J.m^{-1}.s^{-1}.K^{-1}$ ].

$G(z,t)$  : Terme source de chaleur par unité de volume et de temps à la position  $z$  et à l'instant  $t$  ( $\text{W}\cdot\text{m}^{-3}$ ).

La source de chaleur dans le cas de l'ablation laser est l'énergie laser déposée sur la cible, elle est donnée par:

$$G(z,t) = I(z,t) \alpha = I_0(t)(1-R)e^{-\alpha z} \alpha \quad (I-6)$$

Où  $\alpha$  : Coefficient d'absorption du matériau cible.

$I_0(t)$  : Intensité laser ( $\text{Wm}^{-2}$ ) à la surface de la cible.

En supposant que les coefficients thermodynamiques et optiques ne dépendent pas de la température, l'équation (I-5) peut être résolue analytiquement et la température de surface pourra être déduite.

La résolution de l'équation de diffusion de la chaleur permet donc d'exprimer la variation de la température de surface  $T(0,t)$  en fonction du temps, cette expression est donnée par le théorème de Duhamel [19] :

$$T(0,t) - T_0 = \frac{V_{mol}}{C_p \sqrt{k\pi}} \int_0^1 \frac{(1-R)I(t-\xi)}{\sqrt{\xi}} d\xi \quad (I-7)$$

$$\text{avec} \quad k = \frac{K_{th} V_{mol}}{C_p}$$

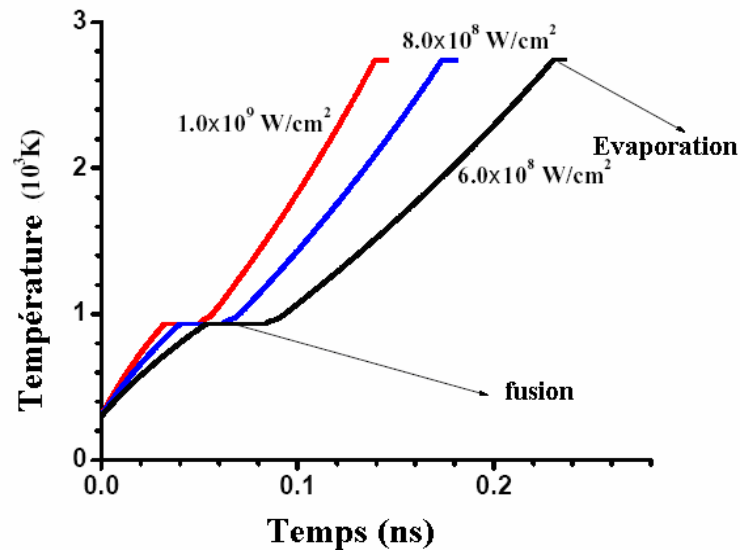
Où :  $T(0,t)$  : la température de surface [K].

$T_0$  : Température initiale du matériau [K].

$V_{mol}$  : Volume molaire [ $\text{m}^3 \cdot \text{mol}^{-1}$ ].

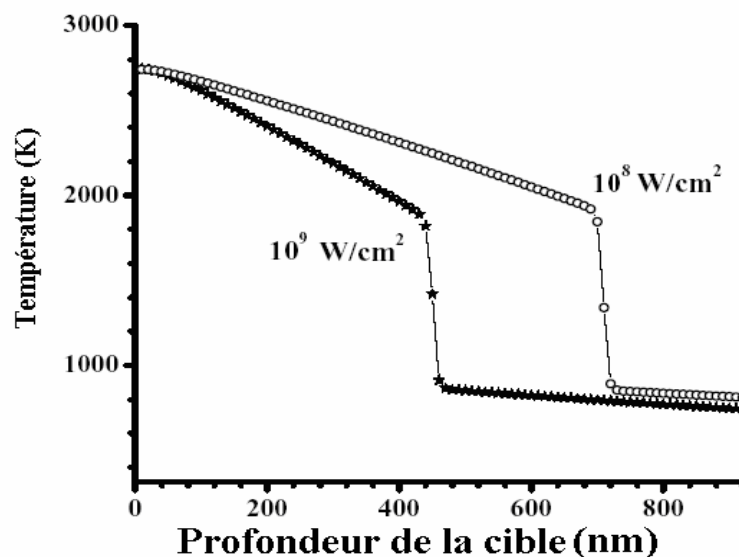
Cependant, comme les paramètres thermodynamiques ne sont pas constants et dépendent de la température, la résolution de l'équation de chaleur ne peut se faire que numériquement.

Franklin et Thareja [20] se sont intéressés à la résolution de cette équation à une dimension, en prenant en considération les paramètres thermodynamiques et optiques comme dépendant de la température et des changements de phase et cela dans le cas d'une cible d'aluminium irradié par un laser Nd :YAG ayant une longueur d'onde de 1064 nm et une durée d'impulsion de 8 ns focalisé sur une surface de diamètre de 200  $\mu\text{m}$ . La résolution numérique de l'équation de diffusion de la chaleur a permis de calculer le seuil d'ablation, la profondeur d'ablation ainsi que l'évolution de la température de surface du matériau, représenté sur les figures (I-4) et (I-5).



**Figure (I-4):** Evolution de la température de surface d'une cible d'aluminium en fonction du temps, pour différents flux laser [20]

Les résultats obtenus en figure (I-4) [20] montrent que pour un flux laser de  $10^9 \text{ W/cm}^2$  la fusion est atteinte plus rapidement que pour un flux de  $8 \times 10^8 \text{ W/cm}^2$ . Ceci est aussi valable pour l'évaporation.



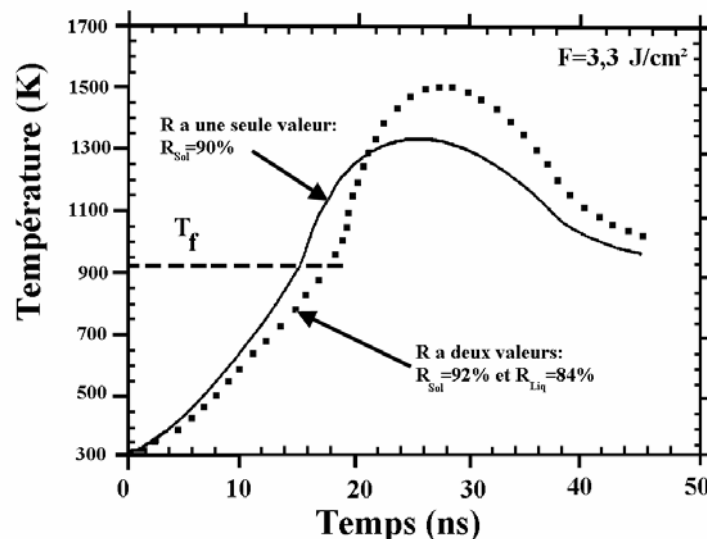
**Figure (I-5):** Profil de la température à l'intérieur de la cible pour deux flux laser [20]

Les résultats des calculs représentés sur la figure (I-5) ont été faits dans le cas où la surface de la cible est à la température d'évaporation [20]. Ces résultats montrent que la zone

affectée thermiquement est plus petite pour un flux laser de  $10^9 \text{ W/cm}^2$  que pour un flux laser de  $10^8 \text{ W/cm}^2$  cela est relié à la longueur de diffusion thermique  $\delta_{th}$  (liée au temps) qui est plus grande à  $10^8 \text{ W/cm}^2$  qu'à  $10^9 \text{ W/cm}^2$ . En reliant les résultats trouvés en figure (I-4) et les résultats trouvés en figure (I-5) on peut dire que lorsque le flux laser augmente le temps mis pour atteindre la fusion ou l'évaporation du matériau cible est faible, et par conséquent la zone affectée thermiquement le sera aussi.

Les coefficients thermodynamiques varient avec la température. Ceci constitue bien sur une difficulté supplémentaire, car au-delà de la température d'ébullition, ils sont inconnus pour la plupart des matériaux. Pour illustrer l'importance de cet effet, Franklin et Thareja [20] ont calculé le temps mis pour atteindre une température de surface égale à la température d'évaporation. Ainsi, à une intensité de  $10^9 \text{ W/cm}^2$ , la température de surface d'une cible d'aluminium atteint la température d'évaporation au bout de 4 ns, à comparer à 2,6 ns calculé dans la référence [21] ne tenant pas compte de la variation des coefficients thermodynamiques avec la température.

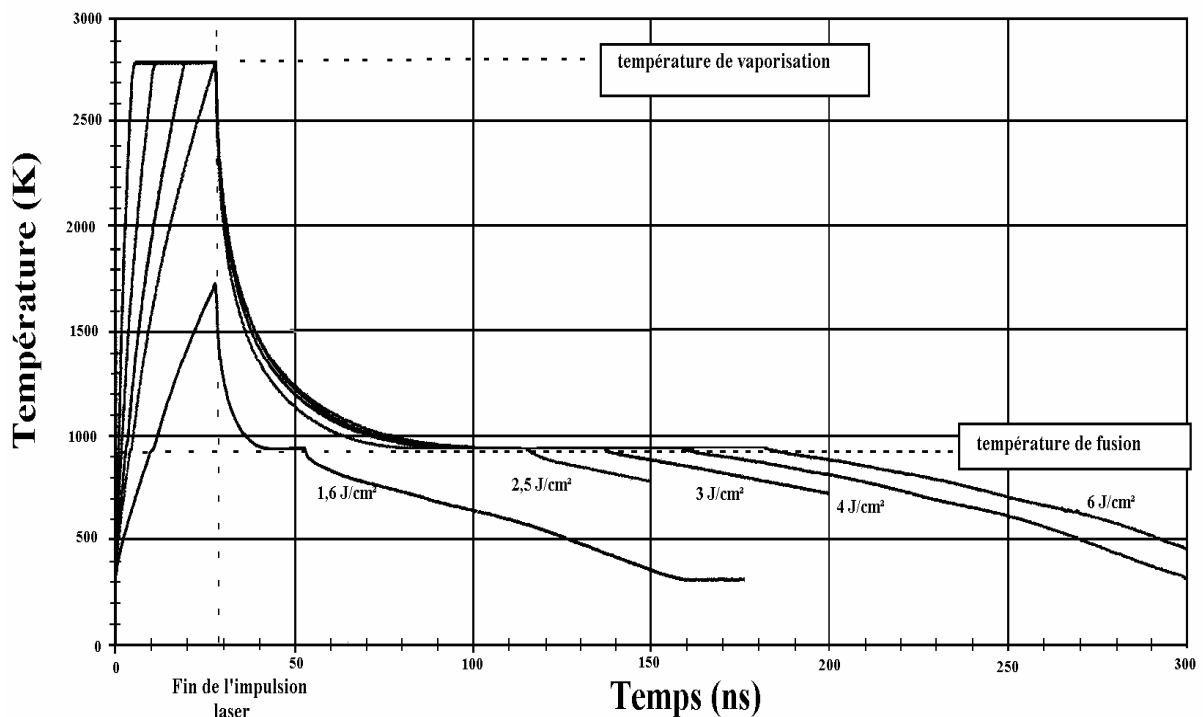
D'autres travaux dans la résolution numérique de l'équation de chaleur dans les références [22,23] pour une cible d'aluminium irradié par un laser XeCl de 308nm de longueur d'onde et 28ns de durée d'impulsion, ont montré que le choix des paramètres optiques et thermodynamiques ainsi que leurs variations avec la température change clairement l'évolution de la température de surface du matériau.



**Figure (I-6) :** Evolution de la température de surface selon Thomann [22]

Sur la figure (I-6) Thomann [22] montre l'influence du coefficient de réflexion  $R$  sur l'évolution de la température en fonction du temps. Il considère dans un premier temps que  $R$  est constant et a une seule valeur celle de la phase solide, ensuite il refait son calcul en prenant le coefficient de réflexion comme ayant deux valeurs (il tient compte du changement de phase), il obtient deux évolutions de la température en fonction du temps différentes pour les deux cas (figure (I-6)). Ces résultats montrent que la température d'évaporation de l'aluminium qui vaut  $2740\text{K}$  pour une fluence laser de  $3,3\text{ J/cm}^2$  (soit un flux de  $1,18 \times 10^8\text{ W/cm}^2$ ) n'est pas atteinte. En fait Thomann n'a tenu compte que de la variation du coefficient de réflexion, la variation des autres coefficients thermodynamiques et optiques avec la température n'a pas été prise en compte.

Par contre, sur la figure (I-7) lorsque Sicard [23] a pris tous les paramètres thermodynamiques et optiques de l'aluminium comme dépendants de la température, les résultats obtenus montrent que la température d'évaporation est atteinte pour une fluence laser de  $2,5\text{ J/cm}^2$  (soit un flux de  $9 \times 10^7\text{ W/cm}^2$ ).



**Figure (I-7):** Solution numérique de l'évolution temporelle de la température de surface selon Sicard [23]

L'écart entre la fluence seuil d'évaporation trouvée par les calculs effectués par Thomann [22] et Sicard [23] montre que le choix des paramètres optiques et thermodynamiques ainsi

que leur dépendance avec la température n'est pas négligeable et change clairement la valeur de la température de surface du matériau ablaté.

Or, lorsque la matière est vaporisée, la pression à la surface de la cible augmente, et comme la température de vaporisation dépend aussi de la pression, la modélisation et les calculs sont plus difficiles à effectuer.

La résolution de l'équation de chaleur, ne permet de décrire le régime thermique de la cible que jusqu'au point de fusion. Lorsque la vaporisation est atteinte, il faut tenir compte de la perte de chaleur par évaporation, de la vitesse de récession de la surface de la cible et de la pression de vapeur.

Il existe deux façons de décrire l'évaporation de la cible :

- La première est de considérer que l'évaporation se produit à l'équilibre thermodynamique [24, 25]. Cet état d'équilibre est directement relié à la pression de vapeur saturante de la substance évaporée par la loi de Clausius Clapeyron :

$$\ln\left(\frac{p_1}{p_2}\right) = -\frac{L}{R_{\text{gaz}}}\left(\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1}\right) \quad (I-8)$$

$p_1$  et  $p_2$  étant les pressions de la vapeur saturante relative aux températures  $T_1$  et  $T_2$ ,  $L$  est la chaleur latente de vaporisation et  $R_{\text{gaz}}$ , la constante des gaz parfaits.

- La seconde est de voir ce phénomène comme un processus hors équilibre [26].

Le premier phénomène qui se produit lors de l'interaction d'une cible solide avec un faisceau laser est l'émission d'électrons par la surface. Du fait que la source d'énergie soit un rayonnement laser, il y a émission d'électrons par effet thermoïonique et par effet photoélectrique à un photon, si l'énergie du photon laser est supérieure à l'énergie d'extraction d'un électron ou bien à plusieurs photons [19].

La densité de courant photoélectrique est donnée par la relation suivante:

$$J_1(t) = a_1 I(t) (1-R) T(t)^2 \left[ \frac{1}{2} \left( \frac{h\nu - \Phi}{k_B T} \right)^2 - \frac{\pi^2}{6} \right] \quad (I-9)$$

La densité de courant thermoïonique est donnée par la Relation de Richardson:

$$J_0(t) = AT^2 \exp\left(-\frac{\Phi}{k_B T}\right) \quad (I-10)$$

Où :  $A$  et  $a_1$  sont les coefficients relatifs aux processus thermoïonique et photoélectrique.

$I(t)$  : Intensité laser.

$k_B$  : Constante de Boltzmann.

$T(t)$  : Température de surface à l'instant  $t$ .

$h\nu$  : Energie d'un photon.

$\Phi$  : Energie d'extraction d'un électron.

La densité de courant totale est donc :

$$J(t) = J_0(t) + J_1(t)$$

L'évolution temporelle de la densité de courant totale est liée à la variation temporelle de l'intensité laser et de la variation de la température de surface du matériau en fonction du temps.

Les travaux effectués par Strupp et al [27] dans la mesure de la densité de courant dans le cas de l'ablation laser d'une cible de cuivre (100), ont montré que le premier processus de production d'électrons est l'effet photoélectrique, mais si la densité de puissance laser augmente, conduisant à une augmentation de la température de surface, l'émission thermoïonique prédomine. Des travaux [28] effectués dans le cas de l'ablation par un laser XeCl (308nm) d'une cible de zirconium ont confirmés les résultats de Strupp et al.

Finalement, lorsque un matériau solide est irradié par un rayonnement laser, le processus d'évaporation est précédé de l'émission d'électrons. Le premier processus de production d'électrons est l'effet photoélectrique. Lorsque l'énergie laser augmente par conséquent la température de surface du matériau augmente l'émission d'électrons par effet thermoïonique est dominante.

### **I-1 3. Evaporation de la matière**

Lorsque le faisceau laser entre en interaction avec une cible solide, l'énergie des photons émis est absorbée par les électrons, ces derniers redistribuent cette énergie sous forme d'agitation thermique par interaction électron phonon. L'énergie acquise par les phonons est ensuite redistribuée par diffusion thermique, elle se traduit par une élévation de la température qui affecte une couche d'une certaine épaisseur conduisant à la fusion puis à la vaporisation de la matière. A cet instant, la température de surface atteint la température de vaporisation.

Le flux de particules évaporées noté  $N$  (particules par  $\text{cm}^2$  et par unité de temps) quittant la surface est exprimé comme suit [29] :

$$\begin{aligned} \dot{N} &= 0,82 p_0 \sqrt{\frac{m}{2\pi k_B T_s}} \exp\left(\frac{L}{R_{gaz} T_{vap}} \left(1 - \frac{T_{vap}}{T_s}\right)\right) \\ \text{Ou } \dot{N} &= \alpha_v p_{sv} (2\pi m k_B T_s)^{-\frac{1}{2}} \\ \text{avec } \ln\left(\frac{p_{sv}}{p_0}\right) &= -\frac{L}{R_{gaz}} \left(\frac{1}{T_s} - \frac{1}{T_{vap}}\right) \end{aligned} \quad (I-11)$$

Où :  $p_0$  : Pression atmosphérique.

$p_{sv}$  : Pression de vapeur saturante.

$T_s$  : Température de surface.

$L$  : Chaleur latente de vaporisation.

$\alpha_v$  : Coefficient de vaporisation.

$T_{vap}$  : Température de vaporisation.

La densité de puissance laser seuil de vaporisation du matériau cible est [30] :

$$I_{svap} = c_p \rho (\pi D)^{1/2} (T_{vap} - T_{am}) / [2(1-R)(\sqrt{\tau})] \quad (I-12)$$

Où :

$I_{svap}$  : Densité de puissance seuil d'évaporation [ $\text{W}/\text{m}^2$ ]

$D$  : Coefficient de diffusion thermique du matériau [ $\text{m}^2/\text{s}$ ].

$T_{am}$  : Température ambiante [K].

$\tau$  : Durée de l'impulsion laser [s].

Au voisinage du seuil d'évaporation il y a très peu d'atomes avec une température proche de la température d'évaporation, donc pratiquement pas de collisions (atomes à l'état fondamental) ce qui rend difficile d'estimer la puissance laser seuil d'évaporation par spectroscopie d'émission. Il n'y a que par spectroscopie d'absorption, par fluorescence induite par laser en excitant ces atomes à partir de leur état fondamental qu'il est possible d'estimer cette puissance laser seuil.

La vitesse de récession (recul) de la surface d'évaporation,  $u_{vl}$  est donnée par [19, 29] :

$$u_{vl}(t) = \dot{N} \times (m / \rho) = 0,82 p_0 \times (m / \rho) \sqrt{\frac{m}{2\pi k_B T_s}} \exp\left(\frac{L}{R_{gaz} T_{vap}} \left(1 - \frac{T_{vap}}{T_s}\right)\right) \quad (I-13)$$

La vaporisation de la matière est définie par plusieurs régimes différents donnés par le modèle cinétique :

- Lorsque l'intensité laser est faible, la quantité de matière éjectée (moins d'une mono-couche par impulsion [31]) n'est pas assez dense dans le volume d'interaction considéré au dessus de la cible pour qu'il y ait des collisions entre ces particules évaporées. Leur distribution des vitesses est alors une demi-Maxwellienne avec  $v_z \geq 0$  où  $z$  est la direction perpendiculaire à la cible (la propagation des particules éjectées est semblable à un jet atomique).
- Lorsque l'intensité laser est plus grande et que le nombre de particules éjectées est suffisant pour qu'il y ait des collisions, il se forme près de la surface de la cible une zone collisionnelle, délimitée par quelques libres parcours moyens des particules éjectées. Cette zone est appelée "couche de Knudsen" (CK). Trois collisions par particule sont généralement suffisantes pour l'existence de cette couche [32, 33]. Pour avoir une estimation de la largeur de cette zone on doit estimer le libre parcours moyen.

#### **\*Couche de Knudsen**

La couche de Knudsen est une zone où s'effectue une redistribution des vitesses des particules évaporées de la cible. Une partie de ces particules, après avoir subi des collisions, est extraite de cette couche. A la sortie de la couche de Knudsen, la distribution des vitesses est Maxwellienne avec une vitesse du centre de masse. Une autre partie de ces particules qui, du fait de collisions, se trouvent rejetées vers la surface et s'y condensent avec une probabilité de coefficient de collage admise comme étant l'unité. 18 à 26% du flux de particules émises se condensent sur la cible [32]. Cette couche est considérée comme une discontinuité hydrodynamique, les équations de conservation du flux de masse, de l'énergie et de la quantité de mouvement permettent de relier les paramètres de la surface de la cible à savoir la température, la pression et la densité aux propriétés dynamiques du gaz qui se trouve à la limite [19, 32, 34].

Knight [35] fût le premier à développer un modèle pour l'évaporation rapide des métaux en présence d'un gaz ambiant. Son calcul fut appliqué à l'ablation laser où il introduisit la couche de Knudsen. Les puissances considérées [35] sont de telle sorte qu'un équilibre entre le liquide et la vapeur est établi. A des taux d'évaporation élevés, il considère qu'il existe

une couche de l'ordre de quelques micromètres qui se trouve à l'avant de l'interface liquide, dans laquelle un équilibre thermodynamique règne. Une fonction de distribution de Maxwell est associée à cet équilibre. Cette couche est considérée comme une discontinuité de la dynamique des gaz ou des approximations sur les conditions de saut, sont exprimées en termes de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie.

Kelly et Dreyfus [32] ont utilisé la théorie cinétique d'évaporation hors équilibre sous vide ou en présence d'un gaz. Cette théorie leur a permis de décrire la transformation de l'énergie thermique en énergie cinétique, et de déterminer un angle d'ouverture du jet de vapeur en  $\cos^n\theta$  avec  $n=4$  à  $10$ .

Kools et al [33] ont aussi utilisé la théorie cinétique pour donner la dépendance de la distribution angulaire des particules évaporées avec la masse, le flux laser et la taille de l'impact laser.

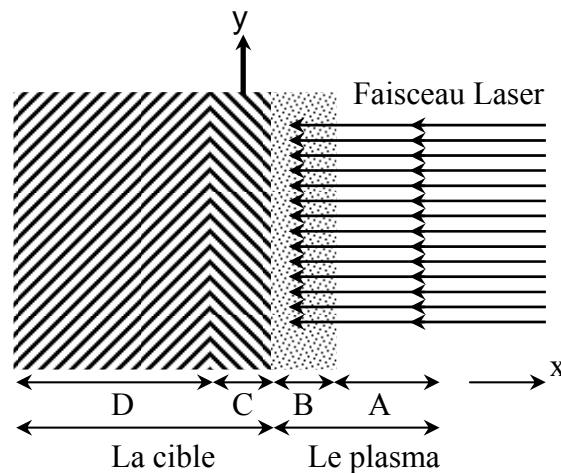
#### **I-1 4. Formation du plasma, interaction entre la vapeur et le faisceau laser**

Lorsque le laser d'une durée d'impulsion de quelques nanosecondes avec un flux dépassant le flux seuil pour l'évaporation, interagit avec la cible solide, les particules sont alors éjectées de la cible. Pour qu'un plasma se forme, il est nécessaire que l'énergie laser absorbée par la vapeur dépasse l'énergie perdue par rayonnement de la vapeur plus l'énergie perdue par expansion des particules de la vapeur. Les particules formant le plasma restent d'abord confinées près de la surface de la cible. Ensuite sous l'effet des gradients de pressions, l'expansion de la vapeur commence et fait apparaître deux régions en interaction avec la radiation laser (Figure (I-8)) [24] :

- Zone A : Plasma en expansion, transparent au laser (peu absorbant).
- Zone B: Prés de la surface de la cible, plasma dense, absorbant la radiation laser.

Les Zones C et D représentent le volume de la cible on distingue alors :

- Zone C : la zone de vaporisation, affectée par le laser. Le laser est absorbé sur une profondeur égale à la longueur de peau, par conduction thermique la chaleur se propage dans la cible sur une longueur appelée longueur de diffusion thermique.
- Zone D : la zone solide non affectée.



**Figure (I-8) :** Schéma représentant les différentes régions de la cible et du plasma [24]

A un instant  $t$ , les particules ablatées occupent un volume dont la dimension est délimitée par les dimensions de la tache focale et par le déplacement suivant la normale à la cible, défini par  $v \times t$ , où  $v$  est la vitesse des particules suivant la direction normale à la cible.

Si le degré d'ionisation de ces particules est suffisamment élevé, l'interaction entre le faisceau laser et la vapeur n'est plus négligeable. Plus le taux d'ionisation des particules augmente, plus l'absorption du faisceau laser par la vapeur augmente et par conséquent l'intensité du flux laser qui atteint la cible diminue. On parle alors d'écrantage par le plasma.

Le chauffage de la vapeur par le rayonnement laser est délimité par les dimensions du faisceau laser où ont lieu les différents mécanismes de gains d'électrons par bremsstrahlung inverse, photo-ionisation et photo absorption, alors que les pertes sont dues aux phénomènes de recombinaison ou de rayonnement. Les processus de photo-ionisation et de bremsstrahlung inverse sont responsables de l'ionisation massive dans la vapeur. Ils sont considérés comme des mécanismes dominants dans les processus d'absorption photonique et cela dans le cas des plasmas produit par laser.

- Le Bremsstrahlung inverse (BI) consiste en l'absorption de photons par les électrons libres lors de leurs collisions avec des particules chargées ou neutres. C'est un mécanisme de gain d'énergie des électrons.



Dans le cas des particules ionisées, la fréquence de collision est plus grande car les interactions coulombiennes sont par définition à longue portée. L'effet BI électron-ion est donc plus efficace que l'effet BI électron-neutre. Le BI assure l'ionisation de la vapeur ainsi que l'excitation des atomes neutre.

Les coefficients d'absorption d'énergie laser dans le cas du BI s'écrit comme [36]:

Dans le cas du BI électron atome neutre :

$$K_a^{en} = 2,2 \times 10^{-32} \sigma_{coll} \lambda^2 (k_B T_e)^{1/2} N_n N_e \quad (I-14)$$

Dans le cas du BI électron atome ionisé :

$$K_a^{ei} = 1,27 \times 10^{-46} \frac{Z^2 \lambda^3 N_i N_e}{(k_B T_e)^{1/2}} (1 - \exp(-\frac{h\nu}{k_B T_e})) \quad (I-15)$$

Où :  $\sigma_{coll}$ : la section efficace de collision électrons neutre

$h\nu$  : énergie du photon ,  $\lambda$ : longueur d'onde associée

$T_e$ : la température électronique

$N_i$  ,  $N_n$  et  $N_e$  : Densité des ions, des neutres et des électrons respectivement

$Z$  : Degré de charge

L'absorption de l'énergie laser par le plasma est caractérisée par un coefficient d'absorption totale notée  $K$ , où  $K = K_a^{en} + K_a^{ei}$ . L'énergie laser est fortement absorbée si le facteur ( $K \times z$ ) est grand ( $z$  est la distance relative à la direction perpendiculaire à la cible). Puisque l'absorption du faisceau laser est plus efficace dans le cas du BI électron-ion que pour le BI électron-neutre, par conséquent  $K = K_a^{ei}$ . Dans ce cas le coefficient d'absorption est proportionnel à  $N_i \cdot N_e$  soit à  $N_i^2$  donc le plasma absorbe le faisceau laser à des distances très proche de la cible où la densité des particules est très élevée.

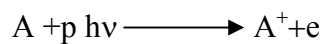
De plus pour le terme  $(1 - \exp(-\frac{h\nu}{k_B T_e}))$  qui représente les pertes par émission stimulée,

lorsque  $h\nu \gg k_B T_e$  et dans le cas du laser Nd :YAG triplé en fréquence ( $\lambda=355\text{nm}$ ) on obtiendra une condition sur  $T_e$  de la forme  $T_e \ll 40535\text{K}$ , dans ce cas le coefficient d'absorption varie en  $T_e^{-1/2}$ . Alors que dans le cas où  $h\nu \ll k_B T_e$  ( $T_e \gg 40535\text{K}$ ) le coefficient d'absorption sera en  $T_e^{-3/2}$ . Tout cela pour dire que l'absorption du faisceau laser

par BI montre des variations en température différentes suivant la gamme de densité d'énergie laser.

De plus à partir des relations (I-14) et (I-15) le coefficient d'absorption BI varie comme  $\lambda^2$  ou  $\lambda^3$ , ce processus est plus efficace pour les grandes longueurs d'onde. Ce mécanisme est donc important dans le cas d'un plasma produit par laser infra rouge (IR), ce qui explique l'utilisation des lasers ultra violet (UV) en ablation laser, on a un meilleur couplage entre la cible et le rayonnement. Cependant, des travaux menés par Rosen et al [37] ont montré que le BI n'est pas négligeable dans le cas d'un rayonnement dans l'ultraviolet même si il est moins important que pour un rayonnement dans l'infrarouge.

- La photo-ionisation (PI) est un mécanisme de gain d'énergie, les atomes neutres absorbent un nombre de photons nécessaire pour que l'énergie absorbée soit supérieure ou égale au potentiel d'ionisation :



A est un atome neutre, p est la partie entière de  $\varepsilon_i/h\nu+1$ ,  $\varepsilon_i$  est le potentiel d'ionisation de l'atome neutre. Ce processus est d'autant plus efficace que le nombre de photon p est faible. En général, l'ionisation photonique à un seul photon à partir des états excités des atomes neutres est beaucoup plus probable que l'absorption à plusieurs photons. La PI est favorisée pour les espèces se trouvant dans un état d'excitation élevée (diminution de l'énergie potentielle d'ionisation).

Le coefficient d'absorption par PI est ( $\text{cm}^{-1}$ ) [38] :

$$\alpha_{PI} = \sigma_{PI} N_n \approx 2,9 \times 10^{-17} \sum_n \frac{\varepsilon_n^{5/2}}{p h \nu} N_n \quad (I-16)$$

Où  $\sigma_{PI}$  : la section efficace d'absorption par photo-ionisation.

$\varepsilon_n$  : le potentiel d'ionisation de l'état excité n (n entier).

$N_n$  : densité d'atomes excités à l'état n.

Dans l'ablation laser le chauffage du plasma par BI se fait à l'équilibre, les particules gardent leur distribution en température à l'équilibre de Boltzmann. L'absorption se traduit par l'augmentation de température mais toujours à l'équilibre. Par contre le processus PI se fait hors équilibre.

On représente au tableau (I-3) les potentiels d'ionisation [39] des différents matériaux cibles utilisés. L'énergie du photon est de 3,5 eV.

Cible	$\varepsilon_i$ : Potentiel d'ionisation (eV)	$E^*$ : Energie du dernier état excité (eV)	$\Delta E = \varepsilon_i - E^*$ (eV)
Carbone (graphite) (C)	11,26	7,94	3,23
Silicium (Si)	8,15	6,09	2,06
Titane (Ti)	6,81	1,50	5,31
Tungstène (W)	7,93	0,77	7,16
Zirconium (Zr)	6,83	1,42	5,31

**Tableau (I-3) :** Potentiel d'ionisation et énergie du dernier état excité pour les cibles de C, Si, Ti, W et Zr [39]

Dans le cas du plasma formé par laser, le bremsstrahlung inverse, la photo-ionisation et la photo absorption existent en même temps. Comme le mécanisme de Bremsstrahlung inverse est responsable de l'excitation des atomes, par conséquent lors du mécanisme de photo-ionisation, l'atome ne sera pas à son état fondamental mais dans un état excité, ces derniers absorberont le photon à partir de cet état. On suppose que l'atome est porté par collision avec les électrons libres de grandes énergies à son dernier état excité.

Dans le tableau (I-3),  $\Delta E$  représente l'énergie nécessaire pour ioniser l'atome. De ce fait la photo-ionisation avec un photon d'énergie de 3,5 eV se fait avec un photon dans le cas du carbone et du silicium lorsque ces derniers se trouvent au dernier état excité. Par contre elle est à deux voire trois photons dans le cas des cibles métalliques qui sont le titane, le tungstène et le zirconium.

On retiendra que dans le cas de l'ablation laser avec une longueur d'onde dans l'U.V, le processus de photo-ionisation est un mécanisme prédominant et très efficace de création d'électrons. En fait les différents mécanismes de création d'électrons (PI, BI) dépendent aussi de la densité de puissance du laser, de la durée de l'impulsion laser et de la nature du matériau cible.

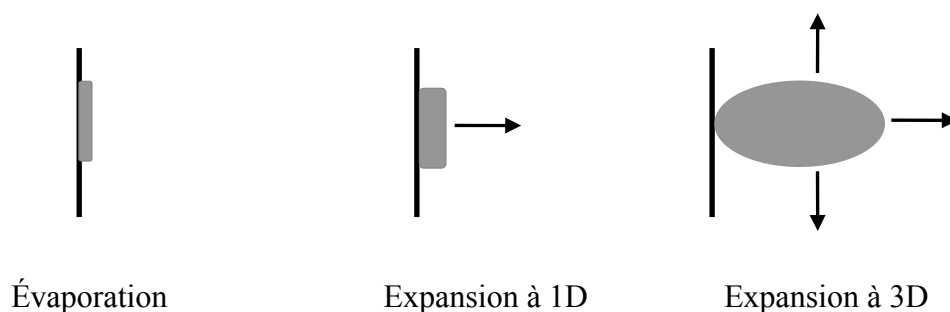
Parallèlement à ces phénomènes d'ionisation de la vapeur qui augmentent, l'absorption du faisceau laser par le plasma change pendant l'ablation laser. Au fur et à mesure que la matière et le degré d'ionisation du plasma croissent, l'absorption du faisceau laser augmente. Si la

densité d'électrons approche la valeur de la densité critique soit  $8 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ , c'est la densité pour laquelle le plasma fait complètement écran à la cible, le plasma devient très absorbant.

### **I-1 5. Expansion du plasma**

Pendant l'impulsion laser l'expansion du plasma débute. Le nuage de matière se détend proche de la surface de la cible. Le plasma est alors en expansion isotherme [24]. Cela se justifie en considérant que le plasma absorbe la radiation laser uniformément sur tout son volume pour maintenir un régime d'auto-régulation, ceci est valable dans le cas où le temps de thermalisation est plus petit que le temps mis pour l'expansion du plasma, ainsi une température uniforme est établie dans le plasma. De plus le temps d'équipartition pour le transfert d'énergie entre électrons et ions est très petit, ce qui conduit à dire que la température des électrons et des ions est la même et cela dans le cas d'évaporation par laser.

Après l'impulsion laser, l'énergie thermique est convertie en énergie cinétique des particules, l'expansion devient alors adiabatique à une dimension (1D) et reste à 1D pendant plusieurs centaines de nanosecondes jusqu'à ce que les gradients de vitesses s'équilibrent dans les trois directions de l'espace, l'expansion devient alors tridimensionnelle (3D) (figure (I-9)) [24, 33]. Autrement dit, les gradients de pression du plasma deviennent plus importants dans la direction perpendiculaire à la cible soit OZ que suivant les directions parallèles à la surface de la cible (Ox, Oy) et cela dans le cas où la taille de l'impact laser est plus grande que la longueur de la vapeur formée. La vitesse des particules est donc plus élevée suivant la direction normale à la cible, l'expansion du plasma s'effectue principalement dans cette direction "on parle de géométrie anisotrope". Le plasma prend alors une forme allongée suivant OZ (panache d'ablation).



**Figure (I-9) :** Schéma représentant l'expansion du plasma

Pour des flux laser de  $10^7$  W/cm<sup>2</sup>, la température du plasma est de l'ordre de  $10^4$ K, les différentes particules présentes dans le plasma ont des vitesses initiales d'expansion comprises entre  $10^5$  et  $10^6$  cm/s, elles ont par conséquent des énergies cinétiques comprises entre 10 et 100 eV [24]. Les gradients de pression qui existent, ont le rôle de forces motrices qui propulsent les particules. Ces gradients sont plus élevés dans la direction normale à la cible que dans une direction quelconque. Dans le cas d'un laser d'une durée d'impulsion de 10ns avec une vitesse d'expansion en moyenne de  $5 \times 10^5$  cm/s, la largeur du volume initiale sera de 50µm. Pour un impact laser de 150µm de diamètre, les gradients de pression sont du même ordre de grandeur dans toutes les directions, conduisant dans ce cas à une expansion sphérique.

Le modèle établi par Singh et Narayan [24] s'est trouvé être adéquat et est appliqué pour décrire l'expansion. La température est prise dans ce modèle comme homogène et constante.

La forme générale du plasma dépend des dimensions de l'impact laser alors que la distribution angulaire des particules dans le plasma est directement liée à la distribution angulaire des particules lors de leur éjection de la cible, un resserrement des trajectoires des particules autour de la normale à la surface de la cible est observé. Ce resserrement des trajectoires est une des conséquences des collisions entre les particules dans le plasma.

Pour décrire analytiquement l'expansion du plasma Kelly et Dreyfus ont proposé une distribution angulaire des particules éjectées de la forme  $\cos^n \theta$ ,  $2\theta$  est l'angle d'éjection des particules, et n un paramètre qui dépend du nuage plasma [32].

Finalement lors de l'impulsion laser l'expansion est isotherme. Ensuite après la fin de l'impulsion laser l'expansion devient adiabatique. L'expansion est à une dimension, ensuite elle devient tridimensionnelle.

Pour estimer la vitesse des particules éjectées, on considère que les particules présentes dans le panache possèdent globalement la même énergie cinétique  $E_c$  à la sortie de la couche de Knudsen (les particules y subissent un grand nombre de collisions et sont à la même température), ainsi pour une particule de masse M, sa vitesse V est telle que:

$$E_c = \frac{1}{2} MV^2 \quad (I-17)$$

$$\text{Où } V = \sqrt{\frac{2E_c}{M}}$$

Ce sont les électrons qui quittent les premiers la cible suivis par les ions beaucoup plus tard. Les électrons se trouvent alors à l'avant du panache d'ablation. Il apparaît ainsi dans le plasma un champ électrique qui permet aux ions de se déplacer plus rapidement que les atomes neutres. A l'inverse, les particules les plus lourdes, comme les molécules et les gouttelettes, sont les particules les plus lentes du plasma [40].

## **I-2 Ejection de particules lors de l'ablation laser**

Comme il a déjà été mentionné le principal inconvénient du procédé de dépôt par ablation laser est l'éjection d'agrégats et de gouttelettes liquides lors de l'interaction entre le laser et le matériau cible. La présence de gouttelettes est l'une des limitations sérieuses du procédé d'ablation laser. L'apparition de ces gouttelettes dans la couche mince déposée dépend aussi bien des caractéristiques thermodynamiques du matériau que des paramètres du laser (longueur d'onde, fluence et durée d'impulsion).

Le présent travail a pour but l'étude de l'apparition de ces gouttelettes sur différentes cibles de différentes propriétés physiques.

### **I-2 1. Interaction entre un laser U.V et une cible solide à haut flux laser**

L'interaction d'une cible solide avec un laser ayant une densité de puissance dépassant  $10^{10} \text{ W/cm}^2$  rend les phénomènes mis en jeu lors de l'ablation complexes à appréhender d'une manière théorique.

La gamme de flux dans laquelle nous travaillons est de " $10^8 \text{ W/cm}^2$  à  $10^{11} \text{ W/cm}^2$ " soit dans une gamme de fluence entre 40 à  $2000 \text{ J/cm}^2$ . Dans cette gamme de fluence laser, les effets thermiques seront prédominants.

### **I-2 2. Les effets thermiques**

Quatre types d'effets thermiques peuvent être distingués lors de l'interaction d'un laser à haut flux avec une cible solide [9-13]:

#### **a) L'évaporation normale**

L'évaporation normale se produit lorsque la cible a atteint sa température d'évaporation. La cible subit alors une évaporation à partir de la surface externe.

Le flux d'atomes évaporés est décrit par les équations de Hertz-Knudsen, et s'écrit (relation (I-11)) :

$$\dot{N} = 0,82 p_0 \sqrt{\frac{m}{2\pi k_B T_s}} \exp\left(\frac{L}{R_{gaz} T_{vap}} \left(1 - \frac{T_{vap}}{T_s}\right)\right) \quad (I-11)$$

L'évaporation normale est peu importante aux bas flux laser, ce qui correspond à une faible élévation de la température de surface de la cible. Plus le flux laser augmente et plus l'évaporation est plus efficace.

### **b) L'ébullition normale**

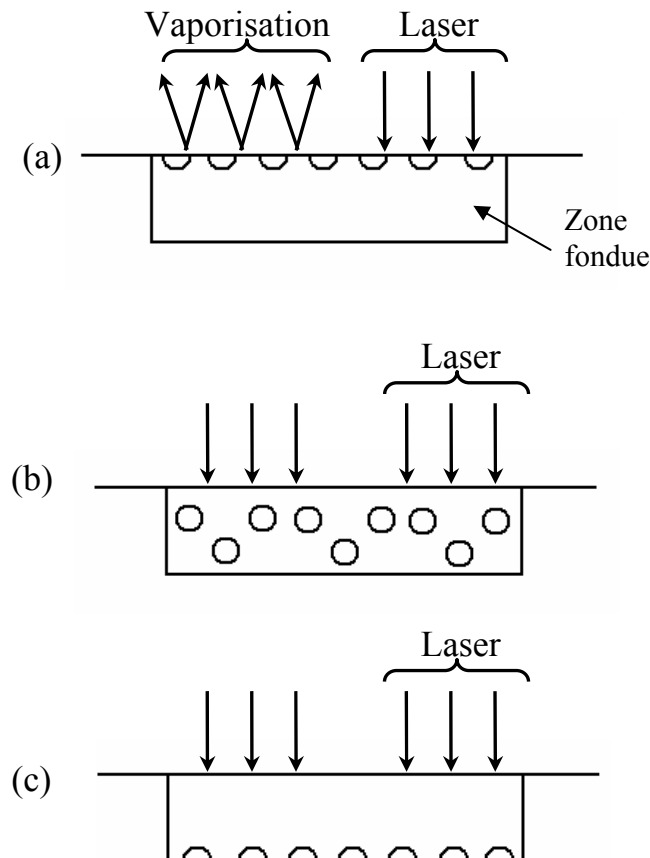
Le deuxième effet thermique est l'ébullition normale, il nécessite une durée d'impulsion laser suffisamment longue pour qu'une nucléation de bulles hétérogènes se produise. La cible subit alors une ébullition normale à partir de la surface jusqu'à une profondeur de l'ordre de l'épaisseur de peau. Dans ce cas la température de surface est égale à  $T_B$  (la température d'ébullition) et le gradient de température à l'intérieur de la cible est nul. Cependant même si les sites nécessaires de nucléation hétérogène existent, leur densité de l'ordre de  $10^6 \text{ kg}^{-1}$  [9, 10] peut être tellement basse que l'ébullition reste peu importante.

La nucléation des bulles de vapeur commence de façon hétérogène, à partir d'une variété de défauts tels que les impuretés solides ou gazeuses, ou sur une surface solide. Pour qualifier les premiers stades de formation de la bulle de vapeur, on parle d'embryons. Leur diamètre est inférieur à 100nm et leur croissance est rapide [41]. Suivant qu'ils atteignent ou non la taille critique, les embryons poursuivront leur croissance ou disparaîtront.

Plusieurs modes sont envisageables pour la nucléation hétérogène des bulles de vapeur (figure(I-10)) :

- a) Si on considère que les bulles sont à la surface externe de la cible, i.e la surface irradiée par le laser, il n'y aura pas réellement nucléation de bulles, ce phénomène conduit plutôt à l'augmentation de l'évaporation normale. On ne peut pas parler d'ébullition pour ce cas étant donné l'absence de diffusion des bulles pour s'échapper du bain fondu, mais plutôt une augmentation de la surface effective irradiée.
- b) Si les bulles sont formées au cœur de la zone fondue, les travaux de Fuke et Seydel [42] montrent que la densité de sites de nucléation hétérogène dans le volume du liquide est négligeable devant ceux produits sur les parois.

- c) Si par contre les bulles sont formées à l'interface liquide solide, une fois formées, elles doivent diffuser dans le bain fondu jusqu'à la surface. R.Kelly et A.Miotello ont montrés [12, 43] que la diffusion des embryons ou des bulles vers la surface est lente ou négligeable pour des échelles de temps  $< 1\mu\text{s}$ , par conséquent l'ébullition normale est exclue dans le cas de notre expérience.



**Figure (I-10) :** Les différents modes de nucléation hétérogène de bulles de vapeur dans la zone fondue [10]

Dans le cas de l'interaction d'un laser nanoseconde, l'ébullition normale n'intervient pas.

### c) L'explosion de phase

Le troisième effet est l'explosion de phase, ce dernier nécessite une fluence laser suffisamment forte et une durée d'impulsion suffisamment brève. La pression de vapeur augmente très rapidement, ce qui permet à la cible d'atteindre des températures extrêmement élevées de l'ordre de  $0,90T_{tc}$  ( $T_{tc}$  est la température critique du matériau), on observera alors une explosion de phase qui se manifeste par une nucléation homogène de bulles de vapeur

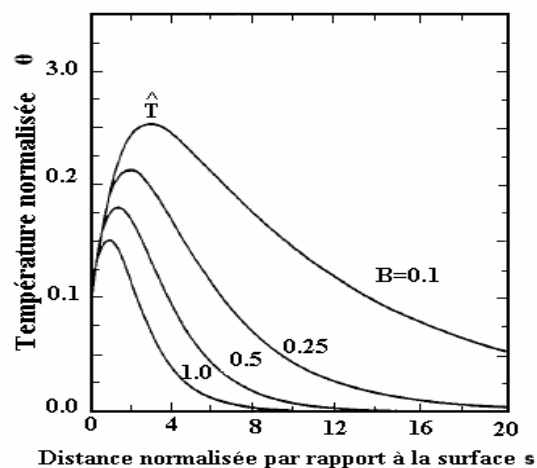
[13]. L'explosion de phase correspond à la transition d'un liquide surfondu vers un mélange de vapeur et de gouttes liquides (voir paragraphe I-2 3).

#### d) Chauffage en volume

Le quatrième processus thermique est le chauffage en volume Dabby et Paek [44] en 1972 furent les premiers à observer ce phénomène, ils ont ensuite proposé un modèle théorique qui a été appliqué par Gagliano et Paek [45].

Le chauffage en volume se produit dans des matériaux à très faible coefficient d'absorption. Le mécanisme d'évaporation constituant une perte d'énergie, le profil exponentiel de la température à l'intérieur du matériau est alors altéré, l'absorption du rayonnement laser n'étant pas modifiée en volume. Ce processus peut alors conduire à un profil de température montrant un maximum à l'intérieur de la cible (de l'ordre de 3000K pour une cible d'aluminium [46]). Ceci crée un gradient de pression entre le volume à haute température et la surface externe de la cible, pouvant conduire à une expulsion de matière explosive. D'un point de vue éjection de matière de la cible, ce phénomène est similaire au phénomène d'explosion de phase même si aucune nucléation de bulles de vapeurs ne se produit, avec en plus l'éjection de débris de matière.

Les différents calculs de Gagliano et Paek [45] ont donné un profil de la température à l'intérieur de la cible de la forme donnée en figure (I-11).



**Figure (I-11) :** Profil de température donné par Gagliano et Paek [44] selon le modèle de Dabby et Paek [45]

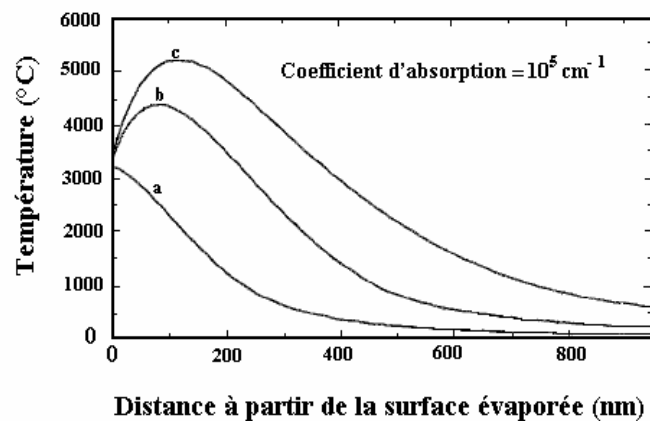
Où :  $\hat{T}$  : température maximum du volume chauffé

$\theta$ : température normalisée, elle est donnée par  $\theta = \frac{T}{T_{vap}}$  ( $T_{vap}$ : la température d'évaporation)

$s$ : la profondeur de la cible,  $s$  est normalisée, et est donnée par  $s = \frac{I_{laser} C_p}{K_{th} L}$  ( $C_p$ : la chaleur spécifique,  $K_{th}$ : la conductivité thermique,  $L$ : la chaleur latente de vaporisation à la température d'ébullition et  $\alpha$ : le coefficient d'absorption)

$\beta$ : un facteur qui dépend de l'absorption du milieu et est donné par  $\beta = \alpha/s$ ,

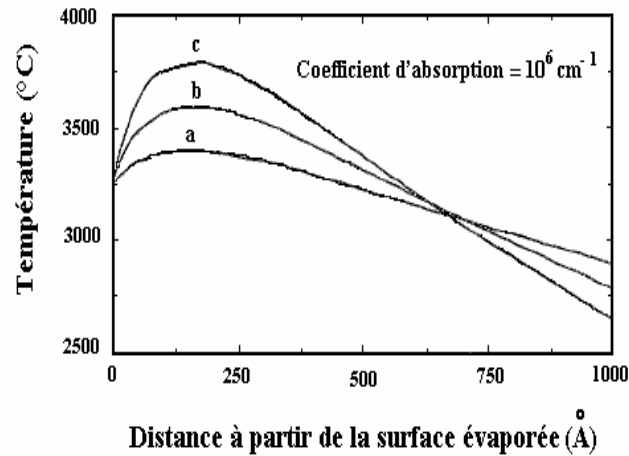
Singh et al [47] ont entrepris un travail théorique et expérimental sur les effets thermiques de cibles évaporées par un laser nanoseconde. Leur expérience a été faite avec un laser KrF et une cible de silicium. La résolution de l'équation de chaleur a permis de déterminer le profil de la température à l'intérieur de la cible. Lorsque le coefficient d'absorption a été pris comme  $10^5 \text{ cm}^{-1}$ , des profils de température de la forme donnée en figure (I-12) sont obtenus. Des températures en volume ont été trouvées plus grandes que les températures en surface de la cible de silicium. Un chauffage en volume se produit. Ce chauffage est dû à la profondeur d'absorption du faisceau laser qui est grande.



**Figure (I-12)** : Profil de température à l'intérieure de la cible de silicium :a) pour un temps de 1,44ns ;b) de 5ns ; c) de 25 ns pour un laser excimère de 25ns de durée d'impulsion et une fluence de  $10 \text{ J/cm}^2$  [47]

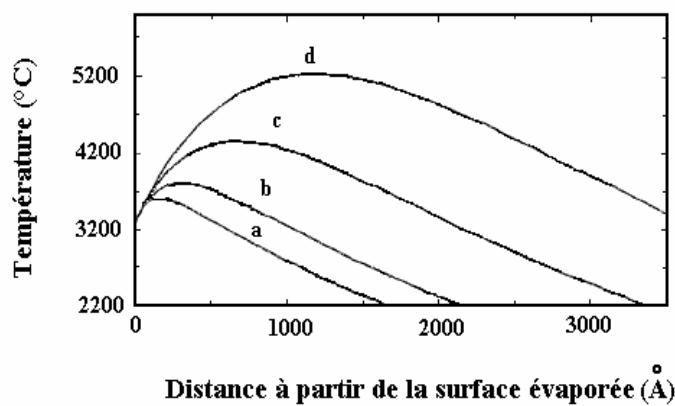
Par contre lorsque Singh et al [47] ont pris un coefficient d'absorption comme  $10^6 \text{ cm}^{-1}$ , le profil de la température change et devient de la forme donnée en figure (I-13). Lorsque la densité d'énergie augmente le chauffage en volume devient plus important avec une

température en volume maximum de  $550^{\circ}\text{C}$  (à  $15\text{J}/\text{cm}^2$ ). Ils concluent dans ce cas [47] pour ne pas avoir un chauffage en volume, la densité d'énergie laser ne doit pas dépasser la densité d'énergie seuil donnant l'évaporation.



**Figure (I-13) :** Profil de température à l'intérieur d'une cible de silicium pour des densités d'énergie de a) 5, b) 10, c)  $15\text{J}/\text{cm}^2$  pour un laser excimer de 25 ns de durée [47]

La figure (I-14) [47] représente le profil de la température à l'intérieur de la cible de silicium pour une densité d'énergie laser de  $10\text{J}/\text{cm}^2$  et à différent coefficient d'absorption. Plus le coefficient d'absorption augmente, moins est important le chauffage en volume.



**Figure (I-14) :** Profil de température à l'intérieur d'une cible de silicium pour une densité d'énergie de  $10\text{J}/\text{cm}^2$  et un coefficient d'absorption de a)  $10^6$ , b)  $5 \times 10^5$ , c)  $2 \times 10^5$  et d)  $10^5$  cm<sup>-1</sup>

[47]

Finalement à travers ce qui a été rapporté par Singh et al [47] on peut dire que le chauffage en volume est un phénomène qui se produit pour des matériaux avec un coefficient d'absorption petit. Ce phénomène devient d'autant plus important pour des valeurs de densités d'énergie élevées.

### **I-2 3. L'explosion de phase**

C'est en 1974 que Martynyuk reconnu comme pionnier a observé ce mécanisme d'explosion de phase appelé aussi ébullition explosive [48], et cela lors de la décharge de condensateurs dans les câbles métalliques. Ces derniers furent brutalement chauffés et évaporés par une forte impulsion de courant électrique. Il a reconnu ensuite que le bombardement d'une surface par un laser pulsé mènera à un comportement similaire et a établi ensuite les principes de ce mécanisme et attribua ce phénomène à la nucléation de bulles homogènes dans une couche de métal fondu.

A partir de cette découverte Martynyuk proposa alors que l'explosion de phase des métaux irradiés par un laser pulsé peut être utilisé pour déterminer les paramètres thermodynamiques critiques. Avec les expériences de vaporisation des métaux par laser pulsé ou par des explosions dans les câbles électriques. Martynyuk développa une loi empirique qui permet d'estimer la température critique  $T_{tc}$ , pour une grande variété de métaux [49].

Fuke et Seydel [42, 50] ont étendu par la suite, de façon importante, l'argumentation proposée par Martynyuk.

Les travaux de Martynyuk furent repris par Kelly et al dans le domaine de l'interaction laser matière en faisant intervenir l'explosion de phase [9-12, 43, 51]. Plusieurs travaux expérimentaux et théoriques mettant en évidence l'explosion de phase ont ensuite suivis [15, 52-70].

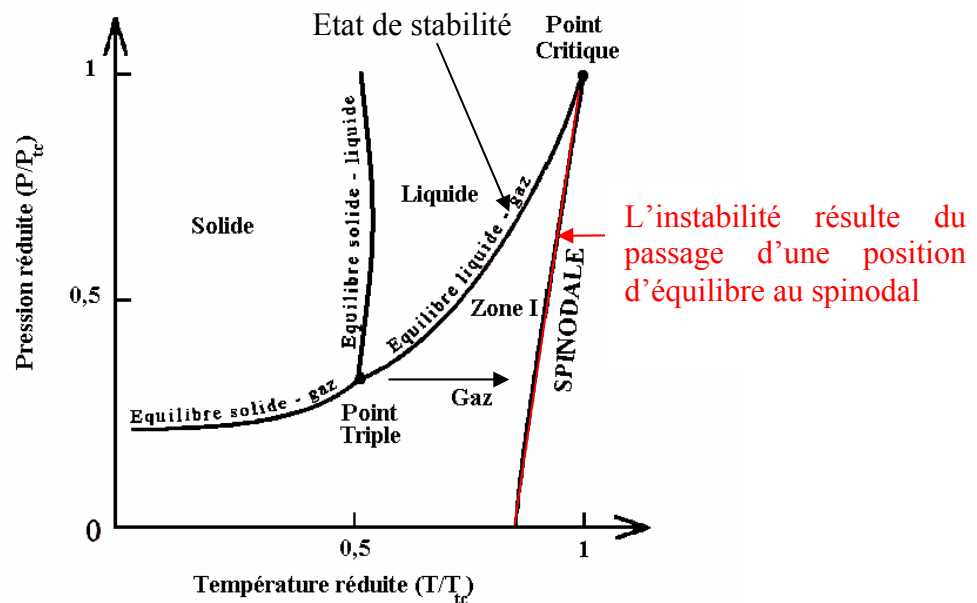
Le mécanisme d'explosion de phase est expliqué par le diagramme de phase en figure(I-15). Dans ce diagramme la zone I qui se trouve entre la courbe d'équilibre liquide-gaz et la spinodale, correspond à l'état de surchauffe métastable de l'état liquide. Au dessus de cette zone se trouve la courbe d'équilibre liquide-gaz qui est limitée dans sa partie supérieure par le point critique et dans sa partie inférieure par le point triple (exception faite

pour l'hélium). La Spinodale liquide-gaz représentée sur le diagramme est une limite de stabilité au-delà de laquelle le système devient instable.

A des températures supérieures à  $T_{tc}$  et à des pressions supérieures à  $P_{tc}$ , (pression thermodynamique critique) il n'existe pas de phase distincte : le corps est toujours homogène et les entropies massiques des phases liquides et gazeuses sont égales.

A la température critique la chaleur latente de changement de phase est nulle, comme la chaleur latente correspond à la quantité de chaleur nécessaire pour qu'un corps puisse changer d'état, par conséquent à cette température les deux phases liquide et gaz sont en équilibre. Par ailleurs, un corps peut exister à l'état liquide au dessus de la courbe d'équilibre liquide-gaz dans un état métastable si la nucléation est évitée.

La température critique est une limite supérieure pour laquelle la température du matériau ne peut dépasser.



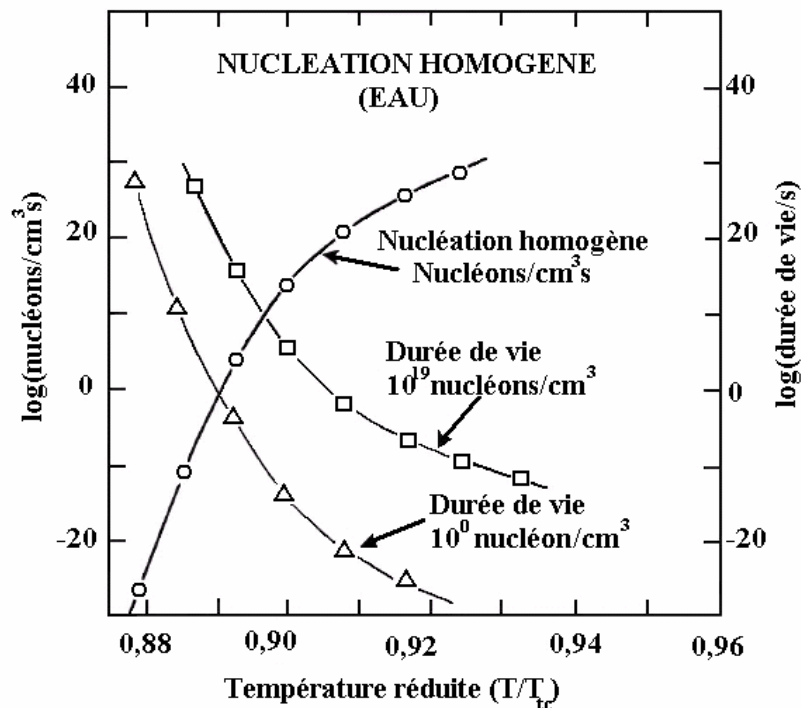
**Figure (I-15) :** Diagramme de phase typique d'un corps homogène

Pour des flux laser dépassant une valeur de  $10^9 \text{ W/cm}^2$ , il est possible d'observer un chauffage de la cible au-delà d'une température de surface de l'ordre de  $\sim 0,9T_{tc}$ . A ce moment là il se forme une couche métastable de liquide surchauffé (zone I de la figure (I-15)) et qui correspond au phénomène d'explosion de phase.

Le taux de nucléation homogène noté  $I_n$  (en  $\text{cm}^{-3}\text{s}^{-1}$ ) est donné par la relation de Martynyuk [48]:

$$I_n = 1,510^{23} \exp\left(\frac{\Delta G_n}{k_b T}\right) \exp\left(\frac{-\tau_{hn}}{t}\right) \quad (I-18)$$

Où :  $\Delta G_n$  est l'énergie libre de formation d'une bulle stable par nucléation homogène et  $\tau_{hn}$  la constante de temps qui lui est associée.



**Figure (I-16) :** Taux de nucléation homogène en fonction de la température et de la durée de vie de l'état métastable, dans le cas de l'eau [48]

Dans la figure (I-16), Martynyuk a mis en évidence le taux de nucléation homogène dans le cas de l'eau. Pour une température  $T < 0,89T_c$  le taux de nucléation  $I_n < 1$ . Lorsque  $T > 0,9T_c$  le nombre de site de nucléation homogène augmente considérablement, et devient significatif ( $I_n \geq 10^5$ ). On cite comme exemple supplémentaire le cas du césium, où  $I_n = 1$  nucléon/( $\text{cm}^3 \cdot \text{s}$ ) pour une température de  $0,874T_c$ , cette valeur passe à  $I_n = 10^{26}$  nucléons/( $\text{cm}^3 \cdot \text{s}$ ) pour une température de  $0,905T_c$  [71]. Par conséquent le nombre de site de nucléation augmente, ce qui conduit à dire que l'explosion de phase est un phénomène à seuil lié à la température de surchauffe du liquide.

La mesure du taux de nucléation expérimentalement est plus facile pour les liquides, c'est pour cette raison que la plus part des courbes établies sont sur l'eau et d'autres liquides.

La valeur de la constante de temps  $\tau_{hn}$  joue un rôle dans la nucléation homogène de bulles, Martynuyk a montré que  $\tau_{hn}$  doit avoir une valeur comparable à la durée de l'impulsion laser pour que la nucléation de bulles de vapeur se produise.

Lorsque les bulles de vapeur se forment et en supposant qu'elles soient sphériques, pour qu'elles ne disparaissent pas dans le volume de bain fondu, leur rayon doit dépasser un rayon critique noté  $r_c$ , donné par la relation suivante [18, 55] :

$$r_c = \frac{2\sigma}{\frac{p_{sat}(T_l) \exp(v_l(p_l - p_{sat}(T_l)))}{R_{gaz} T_l} - p_l} \quad (I-19)$$

Où :  $\sigma$  : Tension de surface liquide

$v_l$  est défini comme :  $v_l = 1/\rho_l$  avec  $\rho_l$  la densité du matériau à l'état liquide

$p_l$  : Pression du liquide surchauffé

$T_l$  : Température du liquide surchauffé

$p_{sat}(T_l)$  : Pression de vapeur saturante, elle est donnée par la relation de Clausius Clapeyron.

On définit aussi le temps  $\tau_c$ , qui est le temps permettant aux bulles de vapeur de croître et atteindre un rayon  $r_c$ .  $\tau_c$ , est donné par [18,55]:

$$\tau_c = r_c \left( \frac{2}{3} \left( \frac{T_l - T_{sat}(p_l)}{T_{sat}(p_l)} \right) \frac{L\rho_v}{\rho_l} \right) \quad (I-20)$$

Où :  $T_{sat}(p_l)$  est la température de vapeur saturante à la pression du liquide surchauffé

$\rho_v$  : la densité du matériau à l'état vapeur

Lors de l'interaction d'un laser avec une cible solide, le taux de masse ablatée notée  $dm/dt$  dépend de l'intensité laser  $I$ , suivant la relation suivante [58]:

$$\frac{dm}{dt} = a I^p \quad (I-21)$$

Où  $a$  est une constante de proportionnalité et  $p$  un nombre réel.

Pour des flux laser inférieur à  $10^9$  W/cm<sup>2</sup>,  $p$  est plus petit que un, le phénomène dominant lors de l'ablation laser et qui est à l'origine de l'ablation de la matière est l'évaporation [58].

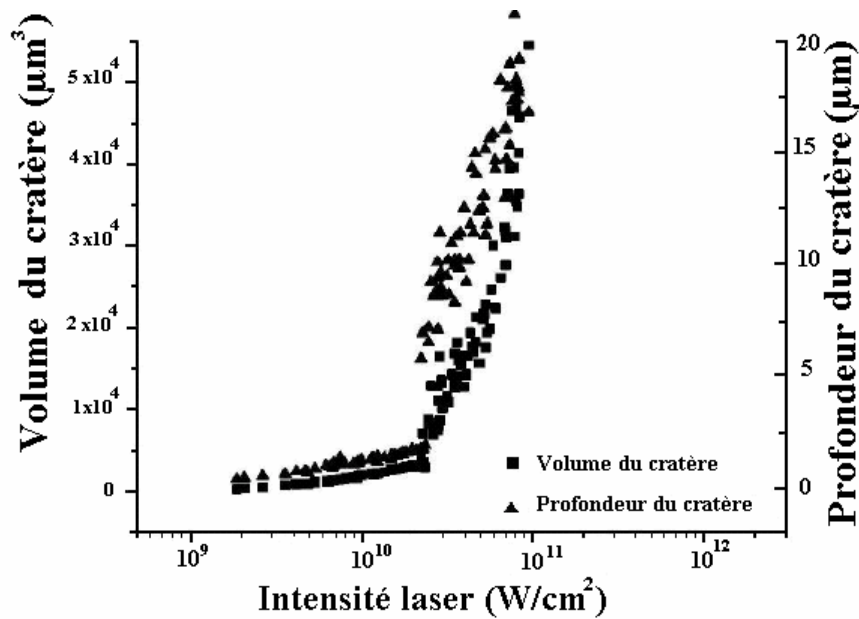
Quand le flux laser augmente et devient plus grand que  $10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>, une augmentation soudaine dans le taux de masse ablatée se produit donnant une valeur de  $p$  beaucoup plus

grande que un, cette augmentation soudaine est généralement attribuée au phénomène d'explosion de phase [58].

Les calculs effectués dans le cas de l'ablation d'une cible de silicium avec un laser Nd :YAG quadruplé en fréquence (266nm) et de durée d'impulsion de 3ns, ont donné des rayons critiques de 0,8 à 4,0 $\mu$ m avec des temps de formation de 90 à 490ns [55]. Dans le même travail des mesures effectuées par imagerie ont montré qu'après passage de l'impulsion laser, il y a un intervalle de temps qui est de 300 à 400 ns pour lequel aucune éjection de matière n'est observée [55]. A approximativement 400ns après l'impulsion laser, une quantité de matière quittant la surface de la cible commence à apparaître. Il a été conclut alors que l'intervalle de temps de 300 à 400ns est le temps nécessaire pour la croissance des bulles de vapeurs, conduisant ainsi au phénomène d'explosion de phase.

Kelly et Miotello [9,51] ont montré que pour des impulsions laser nanosecondes et des flux de  $10^9$  W/cm<sup>2</sup> et plus, le phénomène d'explosion de phase est un mécanisme dominant pour expliquer le transport de matière.

De nombreux travaux ont été menés, dans le cas du silicium monocristallin, pour étudier l'importance de ce phénomène pour des flux laser importants (plus de  $10^9$  W/cm<sup>2</sup>) [54, 55, 58, 60, 68]. Pour cela un laser Nd :YAG quadruplé en fréquence, pour donner une longueur d'onde dans l'U.V de 266nm, et d'une durée d'impulsion de 3ns, a été utilisé dans les références [54, 55, 58, 60]. Par contre dans la référence [68] le laser Nd :YAG a été triplé en fréquence pour donner une longueur d'onde de 355nm avec une durée d'impulsion de 44ns. Des courbes ayant une allure similaire à celle représentée sur la figure (I-17), donnant la variation du volume et de la profondeur des cratères en fonction de l'intensité laser, ont été obtenues. Ces courbes montrent un changement de régime de l'interaction au-delà d'un flux laser de  $2 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>.



**Figure (I-17) :** Volume et profondeur de l'impact laser sur une cible de silicium en fonction de la densité de puissance laser [54]

Bulgakova et al [15, 61, 62] ont aussi mis en évidence le phénomène d'explosion de phase lors de l'ablation par un laser Nd :YAG de 1064nm de longueur d'onde et de 13ns de durée d'impulsion des cible de carbone et de YBCO ( $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  supraconducteur) et cela en mesurant la masse ablatée en pesant la cible avant et après son irradiation par laser à un flux donné. A partir de la courbe donnant la variation de la masse ablatée en fonction du flux laser, Bulgakova et al ont extrait le flux seuil d'explosion de phase et l'ont injectée dans un code de calcul pour remonter à la température de surface de la cible en question. Ainsi ils ont pu déterminé la température critique de la cible de carbone et d'YBCO.

Des travaux mettant en évidence le phénomène d'explosion de phase par imagerie, pour les cibles de silicium [52, 54, 59, 68] de nickel, de germanium et de chrome [64], et cela en analysant les cratères produits lors de l'interaction du laser avec les différentes cibles et à différents flux laser, par un microscope électronique à balayage (MEB) ont été faits. Les impacts produits à des flux de  $10^{10} \text{ W/cm}^2$  ont montré une morphologie différente de celle des impacts produits pour un flux de  $10^8 \text{ W/cm}^2$ .

Pour mettre en évidence l'éjection de gouttelettes pendant l'ablation laser, des images obtenues par ombroscopie pour une cible de silicium [54, 58], pour une cible d'aluminium

[69] et pour des cible de cuivre, de laiton et d'aluminium [70] ont été faites. Ces images ont été obtenues à des flux laser au dessous et au dessus du flux laser seuil d'explosion de phase et à plusieurs instants. L'ombroscopie a permis de visualiser la transition de l'évaporation de la cible jusqu'à l'apparition de gouttelettes due à l'explosion de phase.

Angleraud et al. ont mis en évidence l'éjection de particules lors de l'ablation laser par une caméra ICCD, et cela pour une cible de carbone graphite ablaté par un laser KrF de 248nm de longueur d'onde et de 20ns de durée d'impulsion, et cela pour une fluence laser de 1000J/cm<sup>2</sup> [53].

#### **I-2 4. Estimation de la température thermodynamique critique**

Pour estimer la température thermodynamique critique, Guldberg a établi une loi [72], ou la température critique est relié à la température d'ébullition et cela pour quelques matériaux, cette loi est donnée par:

$$T_{tc} = 3 \frac{T_{eb}}{2} \quad (I - 22)$$

Cette relation a été généralisée pour les liquides inorganiques [73, 74]

$$T_{tc} = \frac{T_{eb}}{\theta}$$

$$\text{Où } \theta = a + \frac{b}{\Delta S_v} \quad (I - 23)$$

où  $\Delta S_v$  est l'enthalpie de vaporisation et les coefficients  $a$  et  $b$  dépendent de la polarisabilité des molécules composant le matériaux. La valeur de  $\theta$  est comprise entre 0,45 et 0,55 pour les solides ioniques et entre 0,25 et 0,5 pour les métaux.

Martynyuk, précédemment cité, propose quand à lui une relation empirique pour estimer la température critique en utilisant la chaleur latente  $L$  du matériau. La température critique s'écrit dans ce cas comme [71]:

$$T_{tc} = c + d.L \quad (I - 24)$$

$$\text{Où } c = 860K \text{ et } d = 15,05.10^{-6} \text{ kmol.K / J}$$

Le tableau suivant représente les valeurs des températures critiques calculées au moyen des relations précédentes pour les cibles que nous avons utilisé dans ce travail :

Matériau Cible	$T_{eb}(K)$ [75]	Loi de Guldberg (K)	Loi de Guldberg généralisée (K)	Relation de Martynyuk (K)	Tabulées (K)
Carbone	4300	6450	8600-17200	11599,3	6470[76]
Silicium	3174	4759,5	5771-7053	6252,18	4886[76] 5000 [55]
Titane	3560	5340	7120-14240	7243,5	5577[76]
Tungstène	5828	8742	11656-23312	12876	11727[76] 13890[77]
Zirconium	4682	7023	9364-18728	9571,6	8377[76]

**Tableau (I-4) :** Estimation de la température critique pour différents matériaux et selon différentes relations

A partir du tableau (I-4) nous constatons que la température critique diffère d'une relation à une autre, et peut passer du simple au double suivant le matériau utilisé. Nous constatons également que les valeurs tabulées dans le cas des cibles de carbone de silicium et de titane sont relativement proches des valeurs données par la loi de Guldberg.

### **I-2 5. Mécanismes supplémentaires d'éjection de particule par PLD**

Il faut cependant préciser que la matière peut être éjectée à partir de la cible par d'autres phénomènes tels que :

- La désorption
- L'instabilité de la surface de la masse fondue
- L'exfoliation

L'état de la cible joue aussi un rôle pour inhiber ou favoriser l'éjection de particules. Deux facteurs macroscopiques apparaissent comme prépondérants pour l'éjection de particules :

- Le premier est la porosité de la cible : en effet plus la cible présente une porosité faible, moins l'éjection de particules est importante.

- Le second est l'état de surface de la cible notamment sa rugosité, une cible rugueuse sera plus propice à l'éjection de particules qu'une cible lisse. Cela est dû au fait que les propriétés thermiques suivent la rugosité de la surface. Les impuretés et les défauts sur la surface ont un comportement thermique lors de l'interaction avec le laser, différent de celui de la surface. Les défauts évacuent moins rapidement la chaleur de la surface et par conséquent leur température croît plus rapidement ce qui conduit à leur éjection.

### **I-2 6. Particules éjectées, comment les empêcher ?**

Plusieurs voies sont envisageables pour améliorer les résultats concernant les particules éjectées par l'explosion de phase ou par le chauffage en volume :

- Travailler sur la nature de la cible et sur les conditions d'interaction laser matériau pour éviter leur formation.
- Avoir recours à un filtre mécanique pour les arrêter en cours de dépôt ; un système rotatif à ailettes peut permettre le filtrage des particules étant donné leur faible vitesse par rapport à la vitesse d'expansion du panache [78-81]. Typiquement, la vitesse des particules condensées est de l'ordre de  $10^4$  cm/s alors que la vitesse des espèces dans le panache d'ablation se situe autour de  $10^5$  à  $10^6$  cm/s.
- Utiliser des configurations particulières permettant de faire diverger la trajectoire des particules condensées et celle du panache (collision de deux panaches ou déviation du panache par un champ magnétique) [82, 83].

La première solution apparaît comme étant la plus simple et la plus naturelle avant d'envisager le recours à d'autres techniques.

### **I-3 Conclusion**

L'interaction d'un faisceau laser avec une cible solide dépend essentiellement des paramètres du laser à savoir le flux laser (énergie laser et durée d'impulsion) ainsi que des propriétés optiques et thermodynamiques du matériau en question.

L'ablation laser pour le dépôt de couches minces s'effectue dans une gamme de densité de puissance allant de  $10^8$  W/cm<sup>2</sup> à quelques  $10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>.

Dans le dépôt de couches minces par ablation laser, trois phases successives sont considérées :

- Interaction du laser avec la matière (cible et vapeur) et la formation du plasma.

- L'expansion du plasma et le transport des espèces de la cible au substrat.
- La formation de la couche sur le substrat.

Pour mettre en évidence les processus impliqués dans l'interaction, la valeur du flux laser mis en jeu est à considérer :

- Pour un flux laser inférieur au flux laser seuil menant à l'évaporation de la cible, seul le chauffage de la cible est produit.
- Pour un flux laser supérieur au flux laser seuil d'évaporation et inférieur au flux seuil laser d'amorçage du plasma, on aura évaporation de la cible.
- Pour un flux laser supérieur au flux seuil d'amorçage du plasma, on a formation d'un plasma à la surface de la cible solide.

Lorsque le flux laser augmente dépassant ainsi le flux seuil d'amorçage du plasma, de 10 fois voire 100 fois sa valeur, des processus thermiques supplémentaires à l'évaporation se produisent. Ces processus sont aux nombres de trois :

- L'ébullition normale (se produit pour des échelles de temps de l'ordre de la micro seconde).
- L'explosion de phase (se produit pour des échelles de temps de l'ordre de la nano seconde).
- L'explosion en volume ou chauffage en volume (lié aux propriétés optiques du matériau cible à savoir l'épaisseur de peau).

Dans le processus de dépôt de couches minces par ablation laser, la compréhension des processus impliqués lors de l'interaction entre le laser et le matériau cible est nécessaire pour l'optimisation des paramètres de dépôts. Le problème majeur qui survient lors du dépôt est l'apparition de gouttelettes sur la couche mince en croissance, détruisant ainsi la qualité de cette dernière

Plusieurs voies sont envisageables pour éviter l'apparition de ces gouttelettes :

- Travailler sur la nature de la cible et sur les conditions d'interaction laser matériau.
- Utilisation de filtre mécanique pour les arrêter en cours de dépôt.
- Diverger la trajectoire des particules condensées et celle du panache.

La première voie sera celle adopter pour éviter la formation des gouttelettes soit "travailler sur la nature de la cible et sur les conditions d'interaction laser matériau".

## CHAPITRE II

### *Dispositif Expérimental*

## **Introduction**

Ce chapitre est consacré à la description du dispositif expérimental. Dans un premier temps, nous présenterons le laser utilisé comme source d'excitation, cette présentation sera suivie par la description de la chambre d'expérience ou "chambre à cible", et pour finir nous présenterons la balance à quartz et le collecteur de charge, tous deux utilisés comme outils de diagnostic.

Un microscope à balayage électronique a été utilisé pour montrer la morphologie des impacts à différents flux laser et à différent nombre de tir laser.

La profondeur des impacts a été estimée par deux systèmes de mesure, un microscope optique à réflexion et un profilomètre.

## **II-1 Le Laser "source d'excitation"**

### **II-1 1. Introduction**

Le laser Nd:YAG est un laser de type solide qui émet un rayonnement cohérent dans l'infra rouge. La matrice grenat d'ytterbium et d'aluminium dopée néodyme possède une combinaison de propriétés favorables pour l'émission d'un rayonnement laser. Le YAG de grande dureté possède une bonne qualité optique et a une conductivité thermique élevée. De plus la structure cubique du YAG favorise des largeurs de raies de fluorescence étroites donnant un gain élevé et un seuil de pompage bas [84].

Présenté sous forme de barreau, l'oscillateur de ce laser est pompé par des flashes linéaires ou hélicoïdaux.

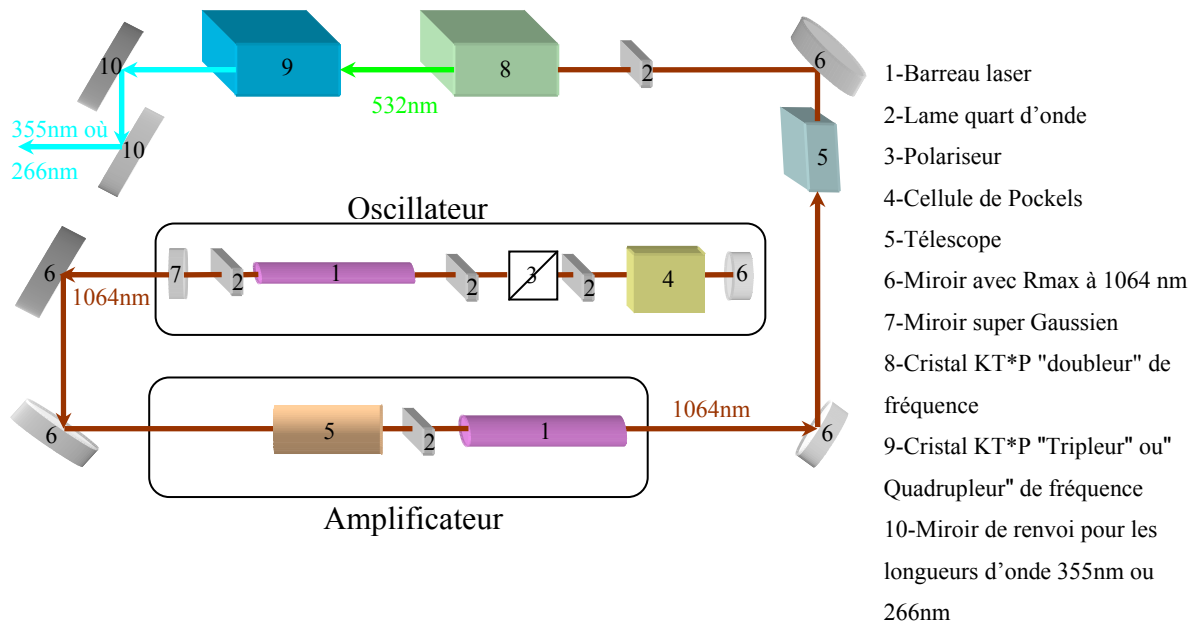
L'élévation de température suite au pompage influe sur la stabilité de l'énergie de sortie c'est pourquoi un système de refroidissement du barreau laser est nécessaire.

### **II-1 2. Le Laser YG 980**

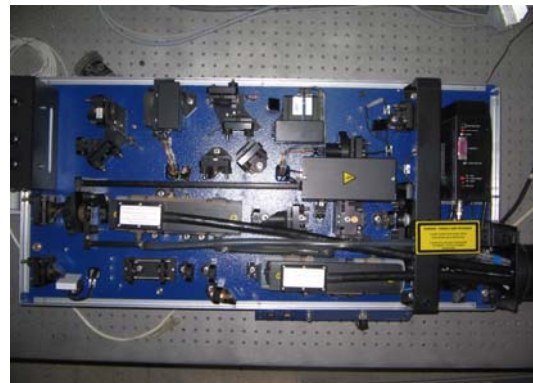
Le Laser utilisé pour l'ablation est un Laser Nd:YAG de marque Quantel YG 980 de référence YG981-C20.

Il se compose de deux parties figure (II-1) :

- La partie optique figure (II-1) a et a').
- L'électronique de commande et le système de refroidissement figure (II-1) b.



a: Schéma Synoptique de la Tête Optique



a': Photographie de la Tête Optique



b: Boîtier d'alimentation

Figure (II-1): Le Laser Quantel YG980

La partie optique contient tous les composants pouvant générer le rayonnement infra rouge et ses harmoniques.

Le boîtier d'alimentation sert à alimenter la tête optique, à refroidir les barreaux laser et à évacuer la chaleur générée par les flashes.

Les principales parties de la tête optique sont :

- L'oscillateur.
- L'amplificateur.
- Le générateur d'harmonique et les optiques associées.
- Le boîtier de commande à distance.

L'oscillateur est composé d'un barreau de 6mm de diamètre et de 115mm de longueur. Il est pompé par des lampes flashes linéaires en xénon.

Lorsque les photons sont émis à partir du barreau suite au pompage par le flash, ils en sortiront avec une polarisation elliptique (photons dus à l'émission spontanée), ils arriveront sur le polariseur et auront en sortie une polarisation rectiligne. L'ensemble, lame quart d'onde cellule de Pockels dans le cas où celle-ci est alimentée à une tension égale à  $V_{\lambda/4}$ , se comporte comme une lame demi onde. Sur un aller retour, les photons vont retrouver la même polarisation et par conséquent l'oscillation sera permise.

Lorsque la cellule de Pockels n'est plus alimentée, à ce moment là l'ensemble lame quart d'onde cellule de Pockels, se comporte comme une lame quart d'onde. Sur un aller retour les photons vont avoir une polarisation rectiligne croisée avec la première. Dans ce cas la l'oscillation ne peut avoir lieu.

La cellule de Pockels est alimentée sur ses deux bornes par une tension égale à  $V_{\lambda/4}$  par l'intermédiaire de deux câbles coaxiaux de longueur différentes. C'est la différence de longueurs de ces câbles qui détermine la durée d'ouverture de la cellule de Pockels.

Pour maximiser le volume actif du laser (éviter les ondes stationnaires), le barreau est placé entre deux lames quart d'onde.

Cette impulsion laser est amplifiée en passant dans un barreau laser de diamètre plus grand. Pour ce laser le diamètre du barreau est de 9 mm et une longueur de 115mm.

Après amplification, le faisceau laser traverse un cristal non linéaire de KTP dans lequel moyennant un ajustement en angle est générée la deuxième harmonique. A la sortie du cristal, deux faisceaux colinéaires l'un à  $1,06\mu\text{m}$ , l'autre à  $0,53\mu\text{m}$ , et d'énergies sensiblement égales,

sont envoyés dans un deuxième cristal non linéaire pour générer la fréquence triple du fondamental.

La génération de la seconde harmonique et de la troisième harmonique est due à une susceptibilité électrique du matériau pour une polarisation du deuxième ordre qui s'écrit :

$$\vec{P}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1, \omega_2) \vec{E}(\omega_1) \vec{E}(\omega_2) \quad (\text{II-1})$$

$P$  est la polarisation du milieu,  $E$  le champ électrique d'excitation,  $\epsilon_0$  et  $\chi$  sont la permittivité et la susceptibilité du milieu.

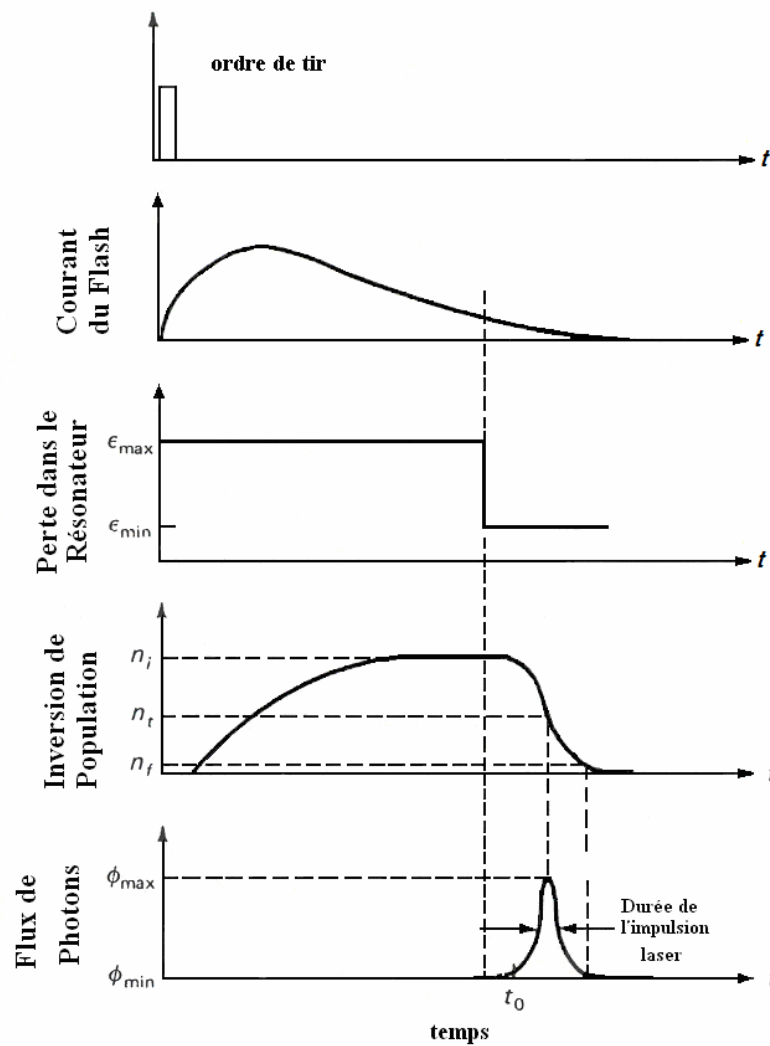
$\omega_1 + \omega_2 = \omega$ ,  $\omega$  est la fréquence générée après le passage par un cristal non linéaire.

La génération de la seconde harmonique est donc un phénomène non linéaire du second ordre avec la particularité :  $\omega_1 = \omega_2$ , dans notre cas,  $\omega_1$  étant la fréquence fondamentale du laser Nd :YAG.

La génération de la troisième harmonique est aussi un phénomène non linéaire du second ordre avec la particularité :  $\omega_1 = 2 \times \omega_2$ . Ce qui donne une fréquence  $\omega = 3 \times \omega_1$ .

### **II-1 3. Propriété du Laser YG 980**

En plus de générer la longueur d'onde fondamentale à 1064nm, le laser YG980 peut générer également sa deuxième harmonique "532nm" en utilisant un cristal doubleur de fréquence, sa troisième harmonique "355nm" par un cristal tripleur de fréquence et sa quatrième harmonique "266nm" par un cristal quadrupleur de fréquence. L'utilisation de ces cristaux nécessite au préalable une optimisation en angle et parfois en température pour avoir un taux de conversion maximum. Cette optimisation est faite en réglant l'orientation du cristal à travers son angle de rotation. Une particularité cependant pour le cristal quadrupleur qui en plus d'un réglage en angle, nécessite une régulation en température [85].



**Figure (II-2) :** Diagramme temporel d'un laser à solide avec un Q-switch [84]

La figure (II-2) représente un diagramme temporel standard d'un laser à solide. La séquence d'un tir laser commence par un ordre de tir qui déclenchera le flash. Avant d'atteindre le maximum d'inversion de population, la cellule de Pockels fixe les pertes dans la cavité au maximum  $\epsilon_{\max}$ . Dès que le maximum d'inversion de population est atteint, la cellule de Pockels est commutée et fait chuter les pertes dans la cavité au minimum  $\epsilon_{\min}$ . Une impulsion laser est alors émise. Dans ce cas de figure, cette impulsion est optimisée et correspond au maximum d'inversion de population, pour un retard entre le déclenchement du flash et l'ouverture de la cellule de Pockels optimisé.

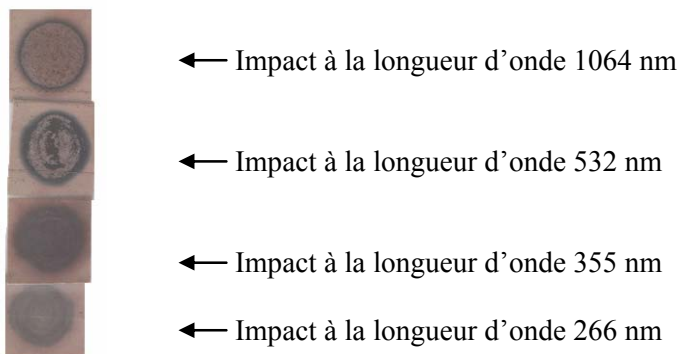
Le laser utilisé est optimisé pour un retard entre le déclenchement du flash et l'ouverture de la cellule de Pockels de  $200\mu\text{s}$  (temps correspondant au maximum de fluorescence) le laser émet alors sa plus grande énergie pour une durée d'impulsion la plus courte. Cependant avec

ce laser il est possible d'avoir des énergies plus basse et cela en augmentant le retard entre le déclenchement du flash et l'ouverture de la cellule de Pockels.

Le retard entre le déclenchement du flash et l'ouverture de la cellule de Pockels peut être ajusté entre  $200\mu\text{s}$  (correspondant au maximum d'énergie) et  $500\mu\text{s}$ , retard correspondant au seuil d'oscillation laser pour la longueur d'onde fondamentale.

Le laser YAG 980 dispose de quatre cadence de tir : 20Hz, 10Hz, 4Hz et 2Hz.

De la figure (II-3), le faisceau laser est circulaire de diamètre 9mm pour les quatre longueurs d'onde.



**Figure (II-3) :** Impactes laser sur papier photo sensible [85]

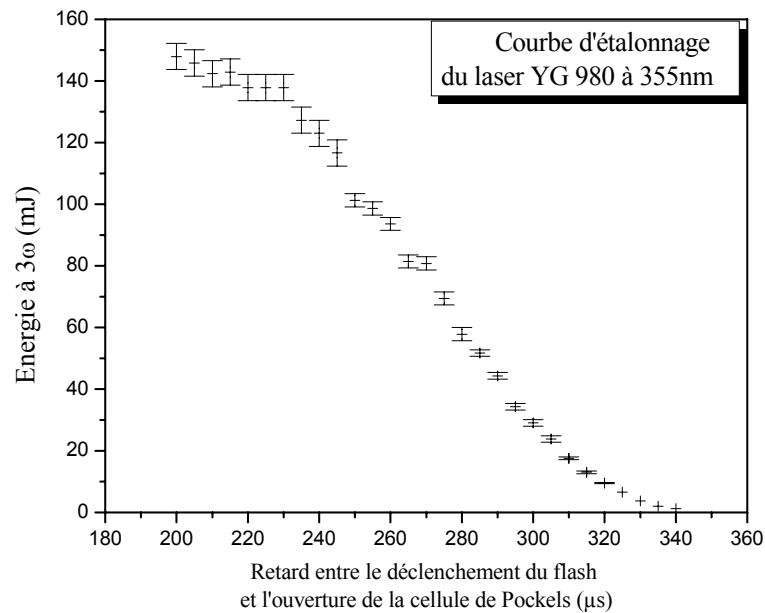
La durée de l'impulsion laser, mesurée avec une photodiode à vide de type XA 1003 de RTC, est de 10ns à la longueur d'onde de 355nm et à l'optimum. Le miroir de sortie du laser est super Gaussien, ce qui donne un faisceau laser de faible divergence de profil spatial plat. Le diamètre des impacts fait avec ce type de laser est sensiblement le même pour toutes les énergies.

#### **II-1 4. Etalonnage du laser**

Pour éviter les contraintes thermiques dans le barreau laser, le constructeur a prévu un pompage à énergie constante et cadence constante 20Hz. Le changement de la cadence de tir laser s'effectue sur le déclenchement de la cellule de Pockels qui peut être réglé comme une fraction de la cadence de tirs des lampes flashes. Les variations d'énergie laser sont obtenues en ajustant le retard entre l'ordre de tir des lampes flashes et le déclenchement de la cellule de Pockels. Ce retard peut varier de  $200\mu\text{s}$  correspondant au maximum de l'émission laser à  $500\mu\text{s}$  correspondant au seuil d'oscillation laser. Pour des retards plus grands que  $360\mu\text{s}$ ,

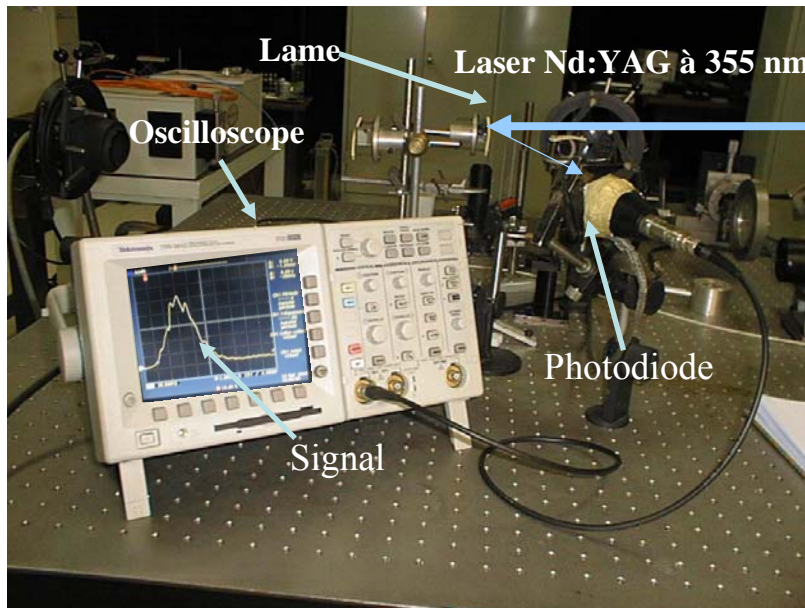
l'énergie délivrée et la largeur de l'impulsion laser ne permettent plus d'avoir un taux de conversion en  $3\omega$  appréciable.

La figure (II-4) représente les valeurs des énergies délivrées par le laser Nd :YAG triplé en fréquence en fonction du retard entre le déclenchement de la lampe flash et l'ouverture de la cellule de Pockels.



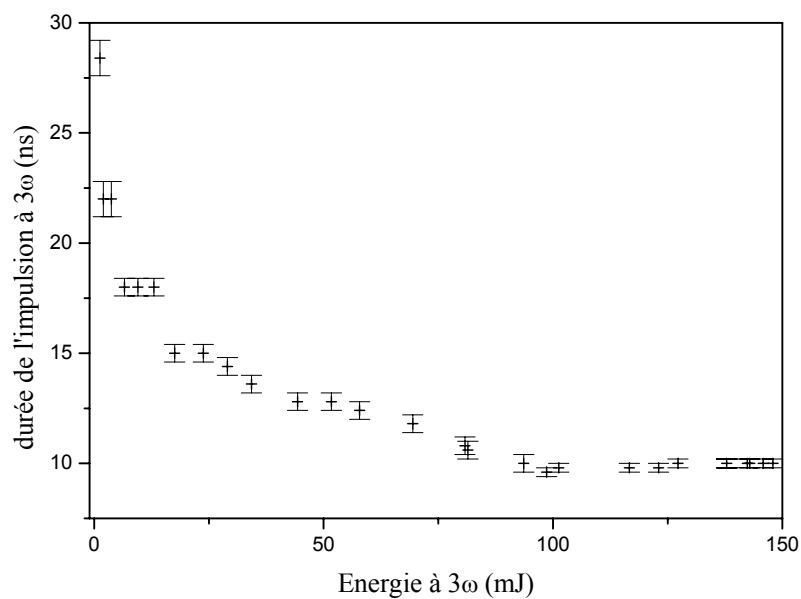
**Figure (II-4):** Energie à  $3\omega$  en fonction du retard entre le déclenchement du flash et l'ouverture de la cellule de Pockels

La durée de l'impulsion laser est définie comme la largeur à mi-hauteur (Full Width at Half Maximum) de l'impulsion visualisée sur un oscilloscope de type Tektronic (TDS 3052) de large bande passante 300 MHz, au moyen d'une photodiode à vide de type XA 1003 de RTC (Radio Technique Compelec) dont le temps de montée est de 0.1ns. Le temps de réponse de cet ensemble déterminé essentiellement par la bande passante de l'oscilloscope est de 1.5ns. La durée de l'impulsion est faite systématiquement tout au long des expériences, en prélevant une partie du faisceau laser au moyen d'une lame partiellement réfléchissante (voir figure (II-5)).



**Figure (II-5) :** Dispositif expérimental pour mesurer la durée de l'impulsion laser

La figure (II-6) représente la variation de la durée de l'impulsion laser en fonction de l'énergie émise par le laser Nd :YAG triplé en fréquence.



**Figure (II-6) :** Durée d'impulsion en fonction de l'énergie laser Nd :YAG triplé en fréquence

## II-2 La chambre à Cible

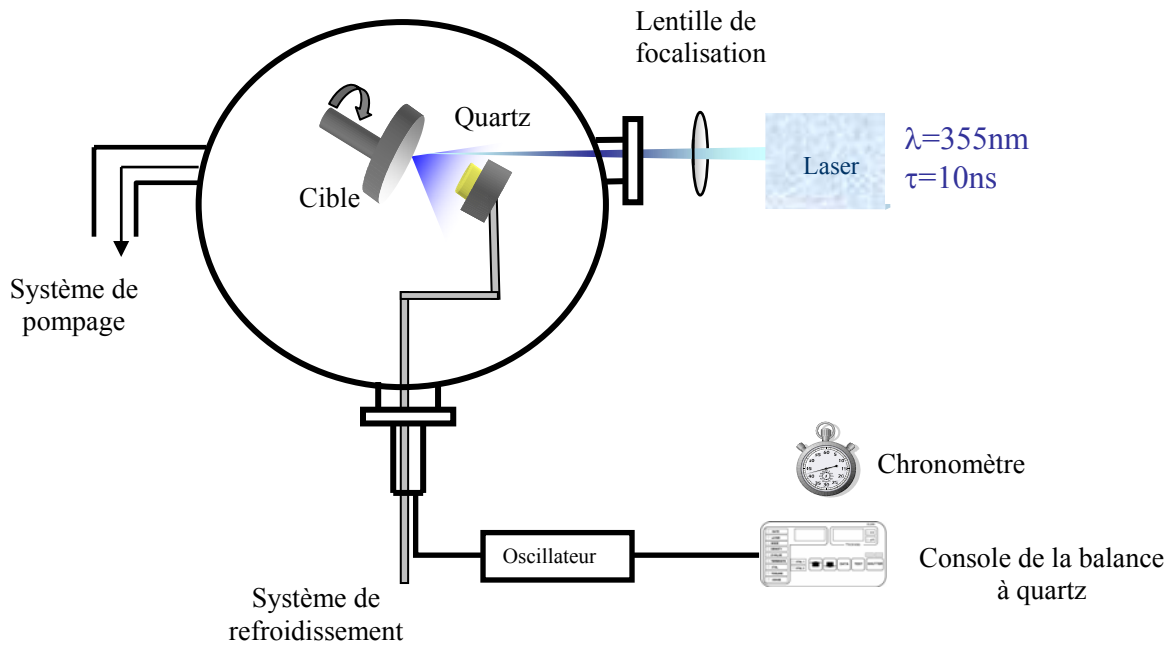
Les expériences ont été réalisées dans une chambre à cible cylindrique en Inox (figure(II-7)) de 29cm de diamètre et de 31cm de hauteur et ayant trois ouvertures circulaires, la première ouverture est munie d'un hublot en silice fondue de qualité grade UV (de référence Melles Griot, UV Grade Synthetic Fused Silica référence 02WLQ307) et sert à l'entrée du faisceau laser. La seconde ouverture est utilisée pour les différents passages étanches (micro balance, collecteur d'ions) et la troisième ouverture est utilisée pour des passages électriques (figure (II-7)). Le pompage de la chambre à expérience est assuré par un groupe de pompage primaire et secondaire assurant un vide de  $5 \times 10^{-6}$  torrs.

A l'intérieur de la chambre d'expérience se trouve un système mécanique composé d'un porte-cible relié à un moteur permettant la rotation de la cible pendant les expériences, et un système de mesure composé d'une micro balance à quartz, et d'un collecteur de charges. Ces éléments de diagnostic utilisés séparément, sont placés face à la cible pour permettre de récolter la matière ablatée lors de l'interaction de la cible avec le laser.

Le faisceau laser est focalisé sur la cible au moyen d'une lentille sphérique en quartz de qualité grade UV de 50cm de focale.



(a): Photographie de la Chambre d'expérience avec une balance à quartz



(b): Schéma de la Chambre d'expérience avec une balance à quartz

Figure (II-7) : Chambre d'expérience

## **II-3 La balance à quartz Intellmetrics IL150**

### **II-3 1. Introduction**

Une balance à quartz "IL150" est un quartz ayant une fréquence propre (dans ce cas la fréquence propre est de 6MHz). Lorsque la matière est déposée sur le quartz, la fréquence propre de ce dernier change d'une quantité  $\Delta f$  dépendant de la masse déposée. Comme les dimensions du quartz sont connues, un logiciel intégré dans la console de commande permet d'afficher directement l'épaisseur déposée ainsi que le taux de dépôt suivant la nature de l'élément déposée (densité, impédance acoustique).

Des données allant jusqu'à 8 couches minces peuvent être enregistrées en mémoire dans la console de la balance à quartz [86]. La balance à quartz peut être utilisée pour contrôler aussi bien le dépôt de couches minces que la gravure de matériau. Pour éviter les effets de dérive dus à une élévation de température, le quartz est refroidit par une circulation d'eau à 10°C [86].

### **II-3 2. Description et théorie de la balance à quartz**

L'élément sensible de la balance est un résonateur avec un cristal en quartz (voir Annexe). Le cristal est une surface plano convexe d'approximativement 14 mm de diamètre et de 3 mm

d'épaisseur qui est excité par vibration de ces modes de cisaillements à la fréquence de 6MHz [86].

La fréquence d'oscillation est déterminée par la masse du matériau déposé sur la surface du cristal. Au fur et à mesure que le dépôt s'accumule, la fréquence propre du cristal diminue.

Sauerbrey [87] fût le premier à proposer l'utilisation d'un résonateur en cristal pour contrôler le dépôt des couches minces. Il a émis l'hypothèse que la couche mince déposée aura le même effet que la masse équivalente du quartz et on aura ainsi :

$$e_f = \frac{F_q D_q}{D_f f^2} (f_q - f) \quad (II - 2)$$

Où :

$e_f$  est l'épaisseur de la couche mince déposée sur le quartz (cm),  $D_q$  la densité du quartz ( $\text{g.cm}^{-3}$ ),  $D_f$  : la densité du matériau déposé en couche mince ( $\text{g.cm}^{-3}$ ),  $F_q$  : la fréquence constante pour l'oscillation de coupure du cristal en quartz en mode de cisaillements (Hz.cm),  $f$  la fréquence du cristal chargé (Hz) et  $f_q$  la fréquence du cristal non chargé (Hz)

Avec la nouvelle génération de balance qui sont le résultat d'améliorations dans le cristal, dans le circuit oscillateur et dans le circuit intégré. Les balances à quartz ont acquit la propriété de pouvoir supporter de grandes charges. Une analyse acoustique plus rigoureuse du cristal chargée comme étant un résonateur unidimensionnel composé d'un quartz donne l'équation suivante :

$$e_f = \left( \frac{D_q}{D_f} \right) \cdot \left( \frac{F_q T Z_f}{\pi Z_q} \right) \cdot \tan^{-1} \left( \frac{Z_q}{Z_f} \tan \left( \pi \left( \frac{1 - T_q}{T} \right) \right) \right) \quad (II - 3)$$

Où :

$T$  : Période du cristal chargé (s)

$T_q$  : Période du cristal non chargé (s)

$Z_f$  : Impédance acoustique du matériau déposé en couche mince ( $\text{g.s}^{-1}.\text{cm}^{-2}$ )

$Z_q$  : Impédance acoustique du quartz ( $\text{g.s}^{-1}.\text{cm}^{-2}$ )

Cette relation fait intervenir le rapport de l'impédance acoustique du matériau relative au quartz.

C'est cette équation qui va nous donner ou afficher la valeur de l'épaisseur déposée sur la balance à quartz utilisé dans nos expériences d'ablation par laser.

### **II-3 3. Utilisation d'une balance à quartz**

Le présent travail consiste à mesurer la quantité de matière ablatée par un laser et cela en changeant le flux laser. La balance à quartz ne permet de récolter que la matière ablatée suivant un angle solide défini comme :

$$\Omega = \frac{S}{d^2} \quad (II - 4)$$

Où :

$\Omega$  : Angle solide (Stéradian).

S : Surface du quartz ( $\text{cm}^2$ ).

d : Distance cible-quartz (cm).

Pour pouvoir remonter à la masse totale ablatée il suffit de connaître la distribution angulaire des particules évaporées lors de l'ablation laser. Les travaux effectués pour décrire analytiquement l'expansion des particules sous l'effet d'un laser se résume comme suit :

Lorsque l'ablation laser de la cible solide sous vide est à faible intensité laser, soit des taux de vaporisation des matériaux bas, la densité de vapeur qui se forme est très peu collisionnelle devant la surface de la cible. Dans ce cas la distribution angulaire de la vapeur d'atome en expansion est décrite par une loi en  $\cos\theta$  ( $\theta$  est l'angle par rapport à la normale à la cible). Quand l'intensité laser augmente, la densité de vapeur augmente et les collisions deviennent importantes dans une région proche de la surface de la cible, c'est la couche de Knudsen qui se forme au dessus de la cible, le nuage de plasma prend une autre forme et son expansion est en une puissance de  $\cos\theta$  [32, 33].

Les prédictions théoriques qui ont été faites par Kelly et Dreyfus en 1988 [32] ainsi que Kools et al [33] ont donnée une distribution angulaire des particules émises comme :

$$Y(\theta) = A \cos^n \theta \quad (II-5)$$

Où :

A : une constante dépendant de la fluence laser

n : un exposant qui dépend de la forme du nuage plasma et de la masse

Kools donne une relation de n comme [33]

$$n = 1,75 \cdot \left(\frac{T_z}{T_\phi}\right) \cdot \left(\frac{m u_k^2}{k T_z}\right)^{3/4} \quad (II-6)$$

Où :

m : Masse atomique en unité (u.m.a).

$T_z$  et  $T_\varphi$  : Températures associées à une expansion elliptique.

$u_k$  : Vitesse du centre de masse du nuage plasma après une expansion à une dimension.

Srivastava et Rohr [88] ont établi une loi empirique permettant de décrire la distribution angulaire de la quantité de matière ablatée. Leur expérience consistait à mesurer la quantité de matière évaporée par une balance à quartz placé à un angle  $\varphi$ , lors de l'ablation par un laser Nd :YAG de longueur d'onde  $1,06\mu\text{m}$ , d'énergie  $125\text{mJ}$  avec une durée d'impulsion de  $5\text{ns}$  (un flux laser de  $10^{10}\text{ W/cm}^2$ ).  $\varphi$  est défini comme l'angle entre la normale à la cible et la normale à la balance à quartz. Leurs mesures ont été faites pour des angles  $\varphi$  allant de  $-15^\circ$  à  $80^\circ$ . Un grand nombre de cibles monoatomiques et diatomiques ont été ablatées, dans une gamme de masse atomique variant de  $27$  à  $184\text{g}$ . Les résultats obtenus ont été décrits par une fonction Gaussienne de la forme [88]:

$$F(\varphi) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{\varphi^2}{2\sigma^2}} \quad (II-7)$$

Où :  $\varphi$  est l'angle d'émission (degrés) et  $2\sigma$  la largeur de la gaussienne (degrés).

Les résultats obtenus par Srivastava et Rohr [88] montrent que la quantité de matière ablatée est maximum pour une position de la balance à quartz face à la cible.

Srivastava et Rohr [88] ont aussi établi une relation empirique entre  $2\sigma$ , la masse atomique et la surface de l'impacte laser sur la cible qui est donnée par la relation :

$$2\sigma = \frac{k}{A} + c$$

$$\text{Où} \quad k = 21\phi + 1110 \quad (II-8)$$

$$c = \frac{17}{\sqrt{\phi}}$$

Où :  $A$  est la masse atomique (uma) et  $\phi$  la surface de l'impacte laser sur la cible ( $\text{mm}^2$ ).

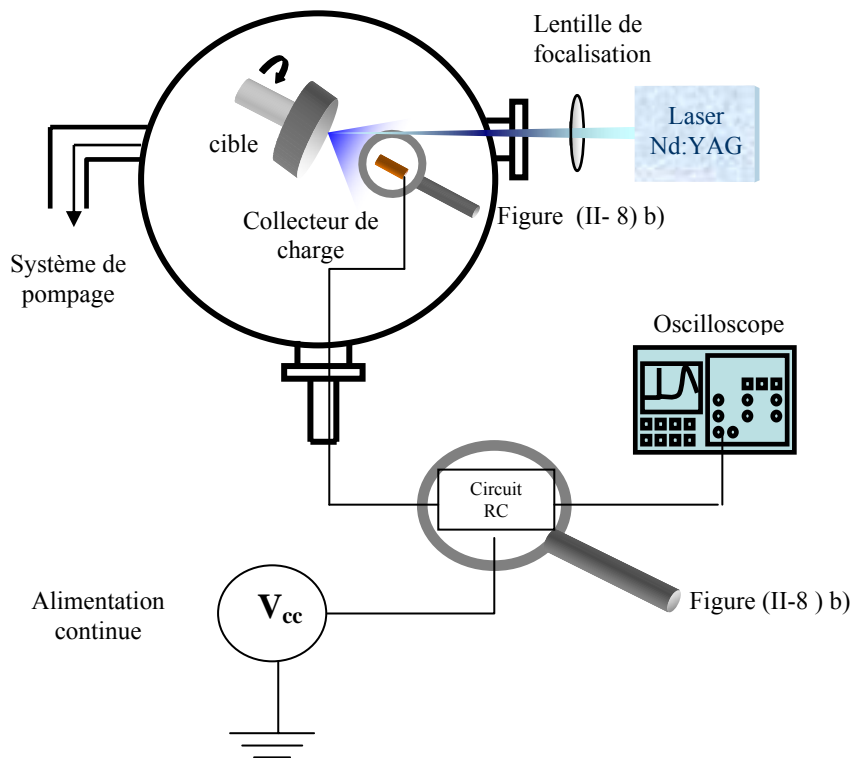
Dans la littérature plusieurs auteurs ont mesuré la profondeur des impacts en changeant le flux laser [55,60,68]. Ces mesures ont été faites avec un microscope optique doté d'un système d'interférence avec une lumière blanche. Dans le présent travail nous avons utilisé une balance à quartz qui mesure juste une partie de la masse éjectée de la cible. Cutrera et al [89] ont fait un dépôt sur un substrat avec une géométrie hémicylindrique, permettant de

mesurer l'épaisseur de la couche mince suivant plusieurs angles. Ils ont trouvés que l'épaisseur de la couche mince suivant la direction normale à la cible était la plus épaisse. Par conséquent, le maximum de matière éjectée de la cible est dans la direction normale à la cible, ce qui rejoint les résultats trouvés par Srivastava et Rohr [88].

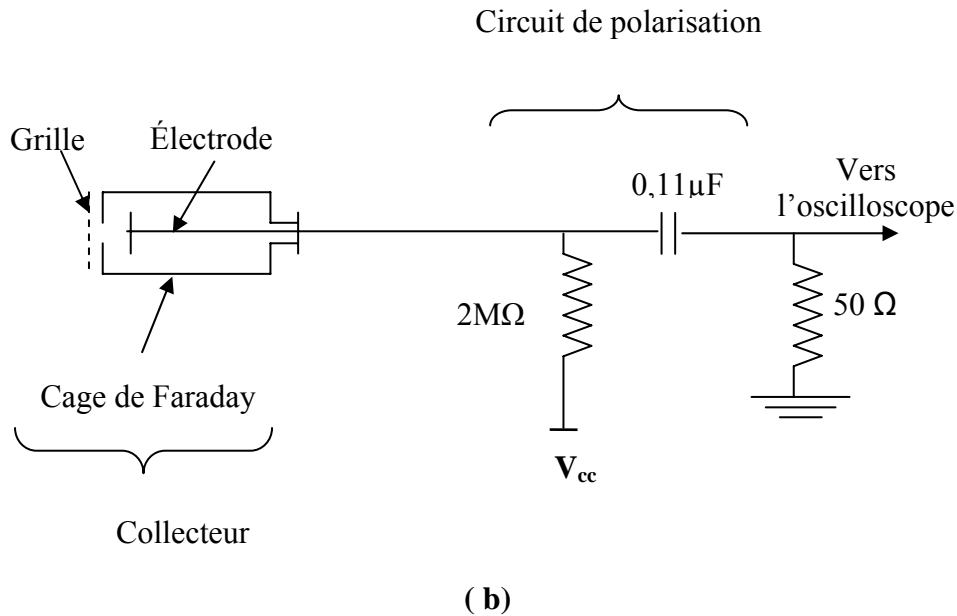
## II-4 Collecteur de charge

L'une des méthodes fondamentales et des plus simples techniques utilisées dans l'étude des plasmas est celle des sondes électrostatiques appelées sondes de LANGMUIR. Elles sont utilisées pour obtenir des informations sur les ions dans le plasma. Généralement, la sonde électrostatique est une petite électrode métallique plane en contact avec le plasma. Elle est reliée à un circuit de polarisation, qui sert à maintenir la tension de polarisation vue par les espèces à collecter toujours constante.

La sonde est reliée à une source de tension continue délivrant des tensions positives ou négatives (figure (II-8)), selon l'espèce collectée [90].



(a)

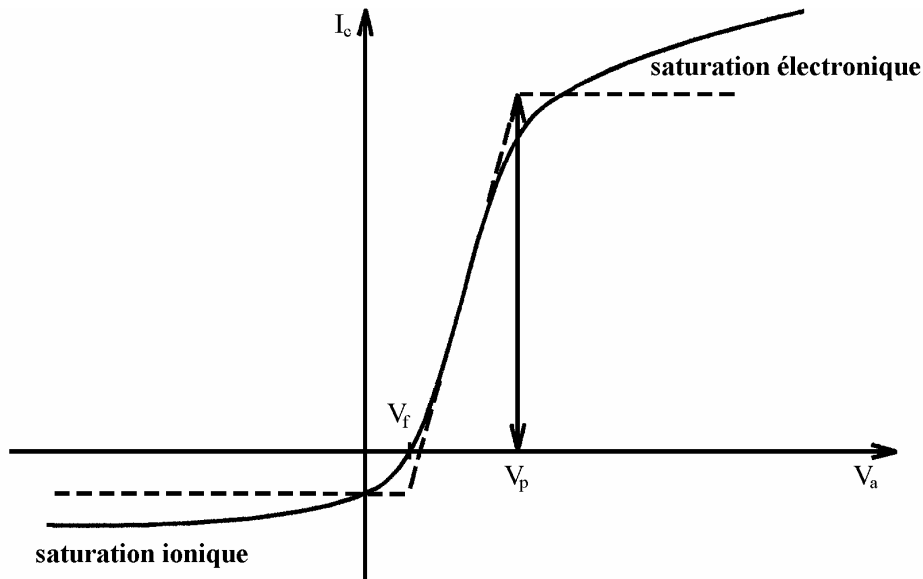


**Figure (II-8) :** a) Dispositif expérimental avec un collecteur de charge,  
b) Collecteur de charge et circuit de polarisation

Le courant de la sonde collecté dépend de la valeur de la tension appliquée. On donne en figure (II-9) le schéma typique de la caractéristique courant-tension d'une sonde dans un plasma, elle est déterminée par les propriétés du plasma au voisinage de la sonde.

De façon qualitative, dans le cas idéal, la courbe caractéristique du courant collecté noté  $I_c$  en fonction de la tension appliquée  $V_a$  d'une sonde électrostatique en l'absence de champ magnétique se présente comme suit :

- Au point  $V_p$  il n'existe aucune différence de potentiel entre la sonde et le plasma. Il n'y a donc aucun champ électrique et le courant collecté est dû à la vitesse thermique et à la vitesse cinétique des particules. Etant donné leur faible masse, les électrons sont beaucoup plus rapides que les ions et ils sont les principaux responsables du courant collecté à cette tension.
- Si on applique sur la sonde une tension positive par rapport à celle du plasma (en d'autre terme  $V_a > V_p$ ) les électrons seront accélérés vers la sonde, tandis que les ions seront repoussés. Ainsi la faible contribution des ions à la tension  $V_p$  disparaît, et il y a accumulation de charges négatives autour de la sonde de façon à équilibrer sa charge positive. Cet excès de charges négatives forme une mince couche autour de la sonde et s'appelle la gaine. Plus  $V_a$  sera grande, plus la gaine sera épaisse.



**Figure (II-9) :** Caractéristique Courant-Tension d'une sonde dans un plasma, montrant la courbe idéale (ligne pointillée) et la courbe typique (ligne solide) [91]

- A l'extérieur de la gaine il existe un très faible champ électrique appelé la pré-gaine qui tend à diminuer la perturbation due à la sonde. Ainsi les électrons pénètrent dans la gaine avec une vitesse thermique aléatoire, en supposant une distribution Maxwellienne et une surface de la gaine augmentant lentement avec l'augmentation de  $V_a$ , le courant électronique forme un plateau légèrement incliné.
- Si par contre on applique une tension négative sur la sonde par rapport au plasma, soit  $V_a < V_p$  les ions commencent à être accélérés vers la sonde tandis que les électrons sont retardés. Le courant électronique diminue avec  $V_a$  et s'il n'y avait aucune contribution des ions, la courbe du courant électronique dans cette région serait une fonction exponentielle, étant donné une distribution Maxwellienne. Lorsque  $V_a$  atteint la valeur  $V_f$ , ou potentiel flottant, la sonde est suffisamment négative pour repousser tout le flux d'électrons excédant le flux d'ions, et il n'y a aucun courant collecté.
- Pour des valeurs de  $V_a$  très négatives, presque tous les électrons sont repoussés et il y a une gaine ionique, ainsi qu'un courant de saturation ionique. La différence de grandeur entre les deux courants de saturation s'explique en partie par la différence de masse entre les ions et les électrons. De plus, les ions sont normalement considérés

froids par rapport aux électrons, un fait qui influence la formation de la gaine et ainsi la collection du courant de saturation.

Dans le présent travail on s'intéresse à la collection d'ions positives, le collecteur est par conséquent polarisé à des tensions négatives suffisamment grandes, de ce fait presque tous les électrons sont repoussés et le courant de sonde noté  $I_{is}$  qui correspond au courant de saturation ionique est donné par l'expression :

$$I_{is} = evA \sum_i z_i n_i \quad (\text{II-9})$$

Où :

$e$  : charge de l'électron

$A$  : surface collectrice de la sonde

$z_i$  : degrés d'ionisation

$v$  : vitesse moyenne d'expansion des ions

$n_i$  : densité des ions dans le plasma.

La vitesse d'expansion dans le cas d'une expansion dans le vide est donnée par :

$$v = \frac{d}{t} \quad (\text{II-10})$$

Où :

$d$  : la distance à entre la cible et le collecteur de charge

$t$  : le temps nécessaire aux ions pour atteindre le collecteur appelé généralement temps de vol.

A partir de la relation de quasi neutralité du plasma donnée par la relation :

$$\sum_i z_i n_i = n_e \quad (\text{II-11})$$

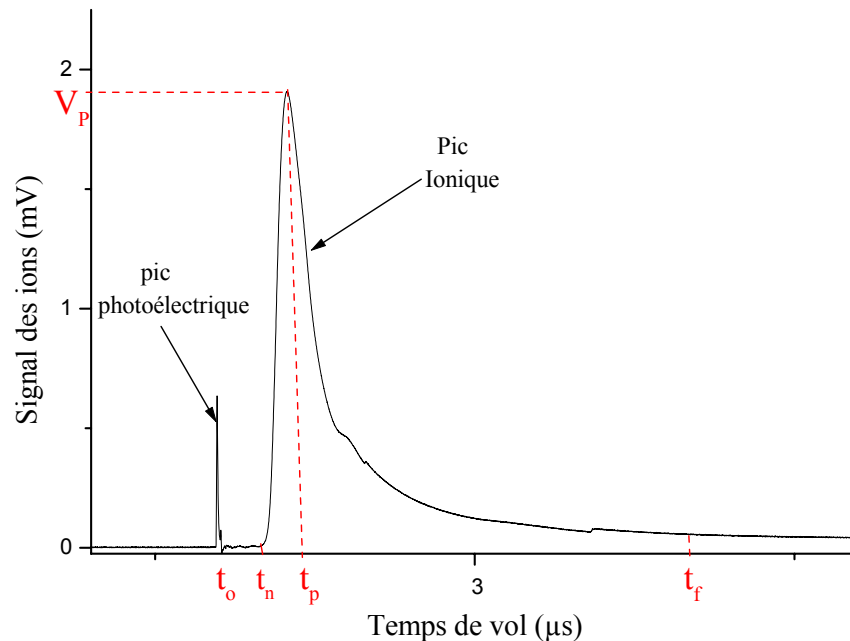
L'intensité du courant ionique devient alors :

$$I_{is} = e v A n_e \quad (\text{II-12})$$

La collection du signal ionique permet alors de remonter à la densité électronique.

On donne en figure (II-10), le signal d'oscilloscope d'un collecteur de charge dans le cas de l'ablation d'une cible de silicium. Il montre l'évolution en fonction du temps d'un signal

ionique, on voit que le plasma possède une structure, qui consiste en un pic photoélectrique et un pic ionique représentant la majeure partie du plasma.



**Figure (II-10):** Signal typique d'un collecteur de charge dans le cas d'une cible de silicium irradiée à 355nm avec un flux de  $6,5 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$

Le pic photoélectrique est dû à l'émission par la plaque du collecteur d'un courant photoélectrique causé par l'impact du rayonnement U.V émis par le plasma, son apparition marque le moment de création du plasma. Le pic ionique marque quant à lui la majeure partie du ions du plasma.

Du signal d'un collecteur de charges, nous pouvons relever trois temps caractéristiques : le temps  $t_0$  correspondant au pic photoélectrique marque l'origine des temps. Le temps  $t_n$  marquant l'arrivée des ions les plus rapides et le temps  $t_p$  marquant le maximum de courant ionique, donc le maximum d'ions.

L'aire comprise sous le signal ionique donne le nombre total d'ions émis dans un cône d'angle solide déterminé par l'orifice du collecteur et la distance entre la cible et le collecteur.

Pour décrire la distribution de vitesse de la vapeur d'atome en expansion lors de l'ablation laser, deux fonctions ont été proposées [32, 91, 92].

Aux faibles taux d'ablation, la vapeur à l'avant de la cible est de faible densité, aussi les collisions entre particules peuvent y être négligées. Dans ces conditions la distribution de

vitesse des particules émises est donnée par une demi Maxwellienne (half Maxwellian), donnée par la relation [32, 91, 92]:

$$f_s \propto \exp\left(\frac{-2E_I + m(v_x^2 + v_y^2 + v_z^2)}{2k_B T_s}\right) \quad (\text{II-13})$$

pour  $-\infty < v_x, v_y < +\infty$ ; ;  $v_z \geq 0$

Lorsque le flux laser augmente, la densité de particules à l'avant de la cible est telle que les collisions entre particules ne peuvent être négligées. Il se forme dans ce cas une couche de vapeur où les collisions sont importantes, conduisant à une redistribution des vitesses des particules. La distribution de vitesse dans ce cas est décrite par une fonction Maxwellienne déplacée (shifted Maxwellian), donnée par la relation [32, 91, 92] :

$$f_d \propto \exp\left(\frac{-2E_I + m(v_x^2 + v_y^2 + (v_z - u_k)^2)}{2k_B T}\right) \quad (\text{II-14})$$

pour  $-\infty < v_x, v_y, v_z < +\infty$ ;

Où:

$k_B$  : constante de Boltzmann

$E_I$  : énergie interne

$m$  : masse atomique de l'espèce en mouvement

$T_s$  : température de surface

$T$  : température liée à la source de l'espèce

Dans le cas où la distribution de vitesse est décrite par une fonction demi Maxwellienne, les particules sont éjectées directement de la cible par conséquent  $T=T_s$  ( $T_s$  est la température de la surface de la cible).

Par contre si les particules sont extraites de la couche de Knudsen, leur distribution de vitesse sera décrite par une fonction Maxwellienne déplacée avec une température  $T$  égale à  $T_{kl}$  ( $T_{kl}$  température dans la couche de Knudsen).

$v_x, v_y, v_z$  sont les vitesses suivant l'axe  $oX$ ,  $oY$  et  $oZ$  respectivement ( $oZ$  étant l'axe perpendiculaire à la surface de la cible)

$u_k$  est la vitesse du centre de masse dans la direction  $oZ$ , elle est donnée par la relation [32, 91, 92] :

$$u_k = \left( \frac{\gamma k_B T_{kl}}{m} \right)^{1/2} \quad (\text{II-15})$$

$$\text{Où } \gamma = \frac{c_p}{c_v} = \frac{J+5}{J+3}$$

$\gamma$  est le rapport des chaleurs spécifiques et  $J$  est le degré de liberté interne défini par :

$$J \text{ est } = \begin{cases} 0 & \text{pour les atomes} \\ 2 & \text{pour les molécules diatomiques en rotation} \\ 4 & \text{pour les molécules diatomiques en rotation et en translation} \end{cases}$$

Le diagnostic du plasma produit lors de l'ablation laser par les sondes de Langmuir donne des signaux dont la forme est donnée par la figure (II-10).

Le flux de particules noté  $\Phi$  est une intégrale sur l'espace des vitesses, donnée par:

$$\Phi(t) = \int v^2 f_d dv \quad (\text{II-16})$$

Où  $f$  est la fonction de distribution des particules.

En pratique, les signaux obtenus par un collecteur de charge sont approximés par la relation (II-17). Cette relation est obtenue en remplaçant dans la relation (II-16) la fonction  $f$  par  $f_d$  [32, 91, 92] :

$$S(t) = \Phi(t) = A z^2 t^{-5} \exp\left(-\frac{m}{2kT} \left(\frac{z}{t} - u_k\right)^2\right) \quad (\text{II-17})$$

$$\text{Où } v_z = \frac{z}{t} \text{ et } dv_x = \frac{dx}{t}; dv_y = \frac{dy}{t}; |dv_z| = z \frac{dt}{t^2}$$

$S(t)$  est l'intensité du signal obtenue par le collecteur (signal du pic ionique).

A travers les mesures par un collecteur de charge, l'approximation du pic ionique par la relation (II-17) et sous certaines hypothèses, permet d'estimer la température de l'espèce au point source. Cela est dû au fait que dans le cas d'une évaporation normale, et à des flux inférieurs au seuil de l'explosion de phase, la température de la couche de Knudsen  $T_{kl}$  est reliée simplement à la température de surface  $T_s$  par une relation déduite des conditions d'équilibre entre le liquide et la vapeur [34].

$$T_s = 0,78 T_{kl} \quad (\text{II-18})$$

## **II-5 Microscope électronique, microscope optique et profilomètre**

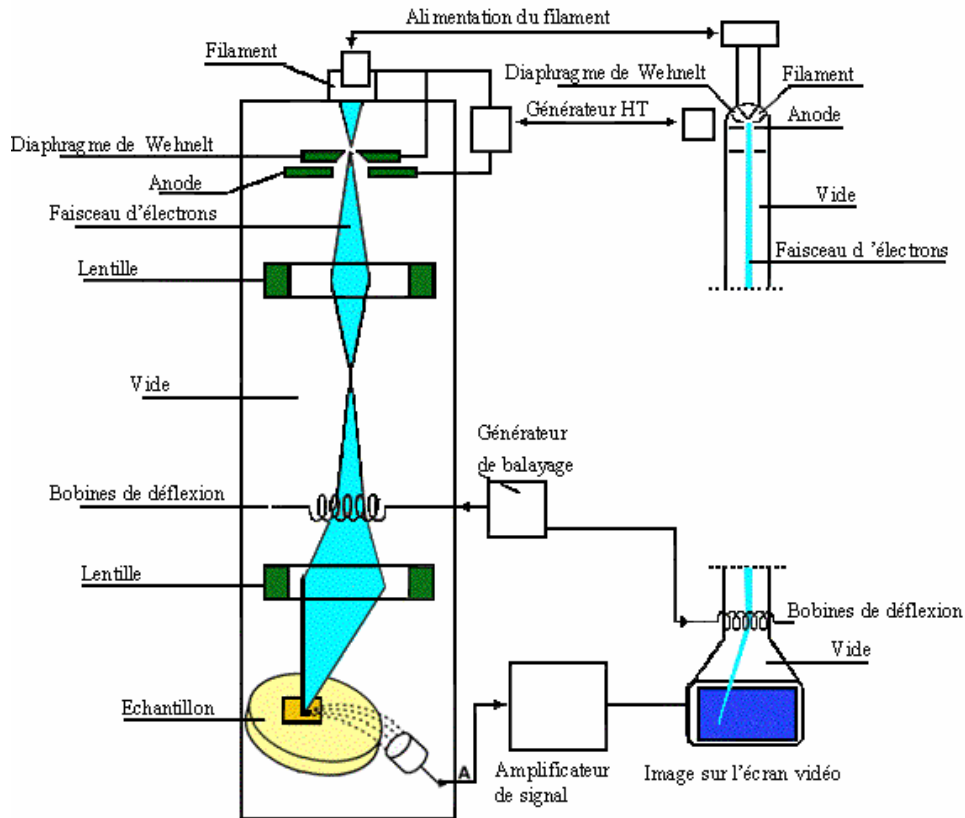
- **Microscope électronique à balayage**

Pour montrer la morphologie des impactes fait par laser, un microscope électronique à balayage (MEB Jeol JSM-6360LV) a été utilisé. Le principe d'un tel microscope (figure (II-11)) est basé sur la création d'un faisceau d'électrons énergétiques par un filament porté à haute température. Ce faisceau passe à travers un système de lentilles électrostatiques (condenseurs pour réduire son diamètre et objectif pour le focaliser) et tombe sur l'échantillon avec un diamètre et une énergie contrôlés. L'interaction électrons/matière donne naissance à divers rayonnements permettant de récolter des informations sur l'objet dont ils sont issus : nous parlerons seulement ici des électrons secondaires, rétrodiffusés, et des rayons X [93].

La formation d'images est réalisée au moyen des électrons secondaires et rétrodiffusés. La résolution de l'image est alors fonction du volume de l'objet d'où proviennent les rayonnements détectés. Pour un diamètre de sonde donné, la résolution de l'image dépend de la composition de l'échantillon, de l'énergie des électrons incidents, ainsi que de la nature et de l'énergie du rayonnement choisi pour la formation de l'image.

Les électrons secondaires proviennent de l'arrachement d'électrons par ionisation sous l'impact du faisceau direct. Ils sont issus d'une couche superficielle de l'échantillon de quelques nanomètres d'épaisseur et possèdent une énergie faible. Ce type d'image possède la meilleure résolution.

Les électrons rétrodiffusés, dus eux aussi aux électrons accélérés dans la colonne du microscope ayant pénétré dans l'échantillon, suivent un parcours plus ou moins important dans la matière, et sont détectés à la sortie de l'échantillon. Du fait de leur plus grande énergie, les électrons rétrodiffusés peuvent provenir d'une profondeur plus importante et la résolution de l'image sera moins bonne que celle obtenue avec les électrons secondaires. Le microscope utilisé à une résolution de 50nm [94].



**Figure (II-11) :** Schéma de principe du microscope électronique à balayage [93]

- **Microscope optique et profilomètre**

Pour avoir une estimation des profondeurs des impacts, des mesures ont été faites avec deux appareils de mesure :

- un microscope optique à réflexion de référence Ortholux Leitz Wetzlar muni d'une caméra et d'un système de traitement d'image de référence Quantimet 500.
- un profilomètre de référence Tencor ALPHA –STEP 250.

La mesure avec un microscope optique à réflexion consiste à estimer la profondeur de l'impact. Pour cela on repère l'impact sur l'écran, et par rotation d'une micro vis on se place au fond de l'impact. A partir de ce point on balaye la profondeur de l'impact jusqu'à ce qu'on arrive à la surface (image nette). La profondeur de l'impacte est estimée comme étant la distance parcourue par la micro-vis entre le fond de l'impact et la surface.

Le profilomètre est un appareil qui permet de mesurer aussi bien les épaisseurs que les profondeurs ainsi que la rugosité d'un matériau. Il est doté d'un stylet de  $12,5\mu\text{m}$  de diamètre et d'un système de translation pouvant parcourir 2 mm. Si l'échantillon n'est pas très rugueux,

la limite de la mesure est de  $16\mu\text{m}$  avec une précision de  $0,0005\mu\text{m}$  ( $5\text{\AA}$ ), alors que si la rugosité de la surface de l'échantillon est importante la mesure est limitée à  $3,2\mu\text{m}$  avec une précision de mesure de  $0,0001\mu\text{m}$  ( $1\text{\AA}$ ) [95]. Pour avoir des mesures précises et reproductibles, le système (stylet et système de translation) est placé dans une enceinte en verre permettant son isolement de tout type de vibration (courant d'air, bruit environnant...). La température à l'intérieur de cette enceinte est de  $22^\circ\text{C}$  [95].



**Figure (II-12) :** Photographie du microscope optique à réflexion

## **II-6 Conclusion**

Pour mesurer la quantité de matière éjectée de la cible, lors de l'ablation laser des cibles de carbone de silicium de titane, de tungstène et de zirconium par un laser Nd :YAG triplé en fréquence, une balance en quartz a été utilisée. Cette dernière a été placée face à la cible, là où le maximum de matière est éjecté. En changeant le flux laser, nous pouvons mesurer la variation de la matière éjectée de la cible considérée.

De plus un collecteur de charge a été utilisé pour diagnostiquer les ions positifs du plasma formé lors de l'interaction entre le laser et la cible en question. Les signaux ont été récoltés à différents flux laser pour les cinq cibles.

Un microscope électronique à balayage a été utilisé dans le but de montrer la morphologie des impacts sur quatre cibles à différents flux laser et à différent nombre de tirs laser.

Une estimation des profondeurs des impacts faits par le laser sur les cibles, a été effectuée avec deux appareils de mesure :

- Un microscope optique à réflexion.
- Un profilomètre.

*CHAPITRE III*

*Résultats & Discussion*

## **Introduction**

Ce chapitre est consacré aux résultats expérimentaux et à leur interprétation. Nous allons présenter les mesures effectuées avec une balance à quartz pour les cinq cibles utilisées (carbone, silicium, titane, tungstène et zirconium) corrélées avec les mesures faites avec un microscope optique à réflexion (à l'exception de la cible de carbone).

Au moyen d'un microscope électronique à balayage nous avons visualisé la morphologie des impacts laser à différents flux.

Nous avons aussi utilisé un collecteur de charge pour mesurer le courant des ions de tungstène et de zirconium ainsi que leur énergie cinétique.

Nous avons aussi tenté d'estimer la température de surface des différentes cibles lors de l'ablation laser en utilisant les signaux de collecteur.

## **III-1 Mesures avec la balance à quartz et le microscope optique à réflexion**

### **III-1 1.Introduction**

Des mesures de la matière éjectée de la cible en fonction du flux laser, ont été effectuées avec une balance à quartz, lors de l'ablation laser des cibles de carbone, de silicium, de titane, de tungstène et de zirconium, avec le laser Nd :YAG cité au chapitre II "Quantel YG981-C20", dont la fréquence a été triplée pour donner une longueur d'onde de 355nm, et d'une durée de 10 ns à l'optimum. L'angle d'incidence du faisceau laser est de 45° par rapport à la normale de la cible, la balance à quartz étant placée à approximativement 3cm face à la cible abâtée.

Chaque point de mesure avec la balance à quartz représente une intégration sur 72 000 tirs lasers (irradiation pendant six minutes à une cadence de 20 Hz) en prenant le soin de n'irradier chaque site qu'avec un maximum de 200 tirs lasers. La mesure des profondeurs des cratères, au moyen d'un microscope optique à réflexion, a été faite pour quatre cibles seulement, la mesure de profondeurs avec ce microscope n'a pas pu être faite dans le cas de la cible de carbone du fait que les impacts n'ont pas pu être localisé sur cette cible à vue d'œil (couleur de la cible). Chaque mesure de profondeur représente une irradiation de 1200 tirs laser. Toutefois ces mesures n'ont été faites qu'à titre indicatif, juste pour vérifier la corrélation avec les résultats obtenus par la balance à quartz.

Pour que la balance soit sensible à l'élément évaporé, des données caractéristiques de la cible utilisée sont introduites dans le calculateur (voir les détails en annexe). Les mesures de la matière évaporée des différentes cibles effectuées avec la balance à quartz, ont été faites en changeant le flux laser. Le faisceau laser est focalisé grâce à une lentille en quartz de qualité garde UV de 50 cm de longueur focale.

Le diamètre de l'impact laser sur la cible a été mesuré directement sur la cible considérée, sous vide et en utilisant un seul tir laser à basse intensité, au voisinage du seuil d'évaporation, afin d'éviter les effets de conduction latérale. Ces impacts sont ensuite visualisés avec un microscope optique de marque Zwick. Cette méthode a été utilisée sur toutes les cibles sauf la cible de carbone, pour laquelle, nous avons utilisé du papier thermosensible. La position de la lentille de focalisation ainsi que la position du porte cible restant inchangés pour toutes les cibles utilisées, le diamètre de l'impact varie entre 130 $\mu$ m à 190 $\mu$ m, suivant l'épaisseur de la cible utilisé.

La fluence laser est définie par  $F=E/s$ , où E est l'énergie laser et s la surface de l'impact. Le flux laser est quant à lui défini par  $\phi=F/\tau$ , où  $\tau$  est la durée de l'impulsion laser.

De la relation (I-12) Chapitre I, le flux laser au seuil de vaporisation noté  $I_{svap}$  pour les cibles de carbone, de silicium, de titane, de tungstène et de zirconium est donné au tableau(III-1) :

Cible	$I_{svap}$ (W/cm <sup>2</sup> )
Carbone	$1,7 \times 10^7$
Silicium	$8,78 \times 10^7$
Titane	$2,85 \times 10^7$
Tungstène	$1,9 \times 10^8$
Zirconium	$2,57 \times 10^7$

**Tableau (III-1) :** Flux seuil de vaporisation calculés par la relation I-12

Le tableau (III-2) donne quelques propriétés des matériaux utilisés. La densité et l'impédance acoustique, paramètres importants pour les mesures au moyen de la balance, ont été données.

Cible	Densité [85] (g/cm <sup>3</sup> )	Impédance acoustique [85] (10 <sup>5</sup> ×g/cm <sup>2</sup> .s)	Coefficient d'absorption (10 <sup>6</sup> ×cm <sup>-1</sup> )	Masse atomique (g)	Pureté (%)
Carbone	2,25	2,71	0,15 * 0,1**	12	99,99
Silicium	2,32	12,39	1,06	28	99,99
Titane	4,5	14,05	0,71	47,86	99,99
Tungstène	19,3	54,14	0,95	184	99,95
Zirconium	6,51	14,72	0,26	91,22	99,20

Pour le carbone (graphite) les données tabulées sont pour :

\*une énergie du photon de 1eV ( $\lambda = 1064\text{nm}$ )[15]

\*\* une énergie du photon de 5ev ( $\lambda = 248\text{nm}$ ) [16]

**Tableau (III-2) :** Propriétés des cibles utilisées

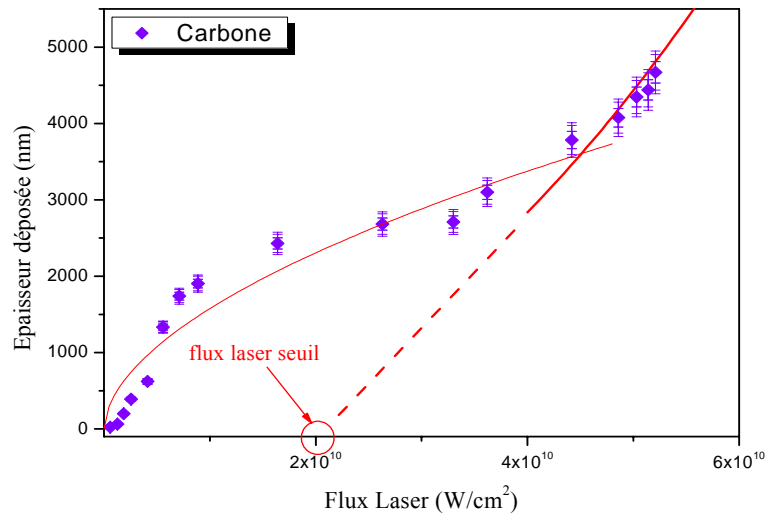
La conductivité thermique ainsi que l'enthalpie de sublimation et d'évaporation à température ambiante sont reportées sur le tableau (III-3).

Cible	Conductivité thermique (W/cm.K) à 298K [17]	Enthalpie de fusion (kJ/mol) à 298 K [65]	Enthalpie de sublimation (kJ/mol) à 298 K [74]	Enthalpie d'évaporation (kJ/mol) à 298 K [17]
Carbone	0,11	non tabulé	716 ,68	715
Silicium	1,4	50,2	450	359
Titane	0,22	18,7	473	425
Tungstène	1,82	35	849,8	800
Zirconium	0,22	21	608,8	580

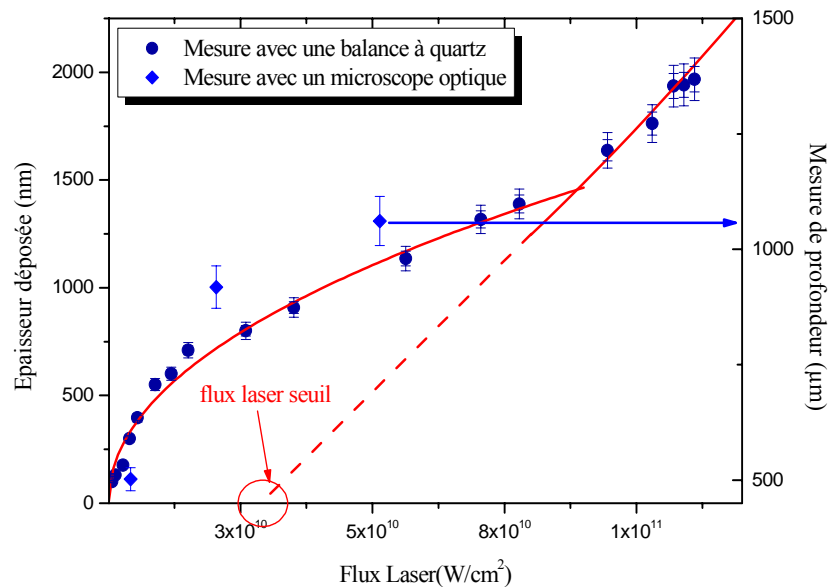
**Tableau (III-3) :** Conductivité thermique [18] et enthalpie de formation des différentes phases[17]

### III-1 2. Résultats obtenus

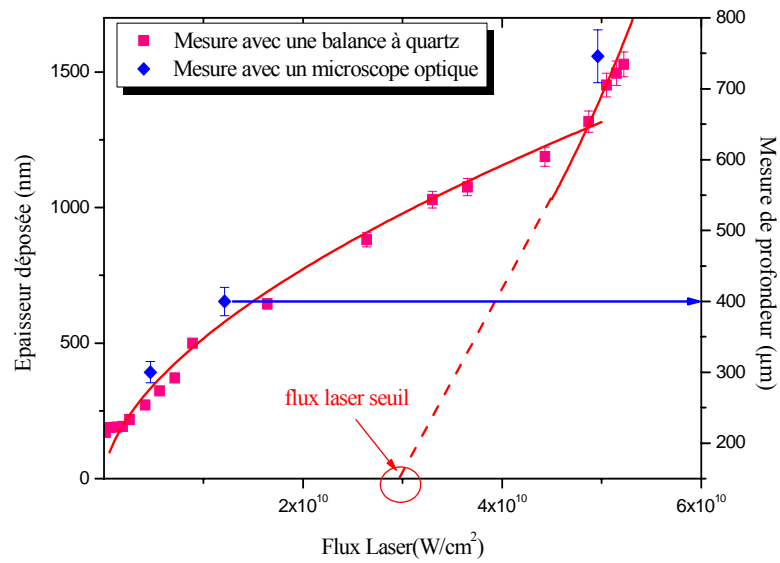
Les mesures effectuées par une balance à quartz pour les cibles de carbone, de silicium, de titane, de tungstène et de zirconium ont données les courbes suivantes, l'épaisseur déposée sur la balance à quartz est donnée avec une précision autour de 10nm:



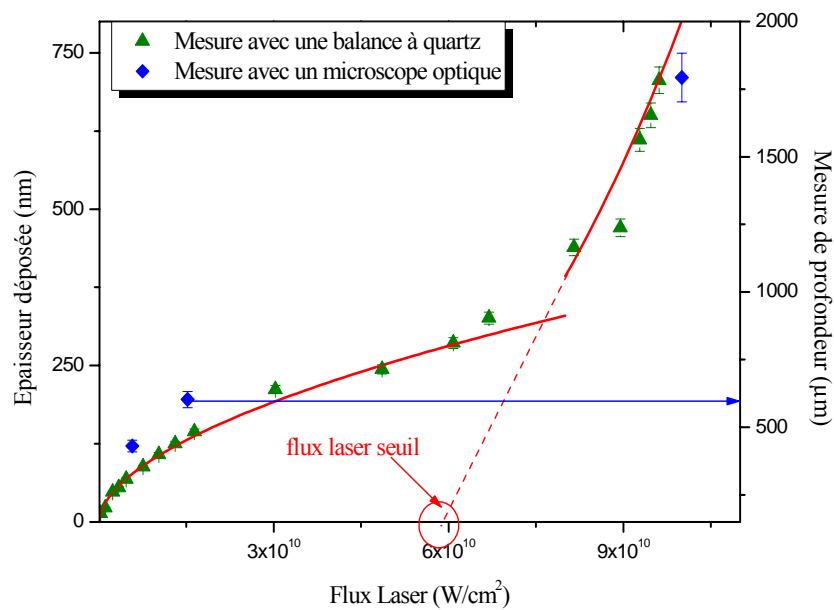
**Figure (III-1) :** Épaisseur mesurée par la microbalance en fonction de l'intensité laser pour une cible de carbone



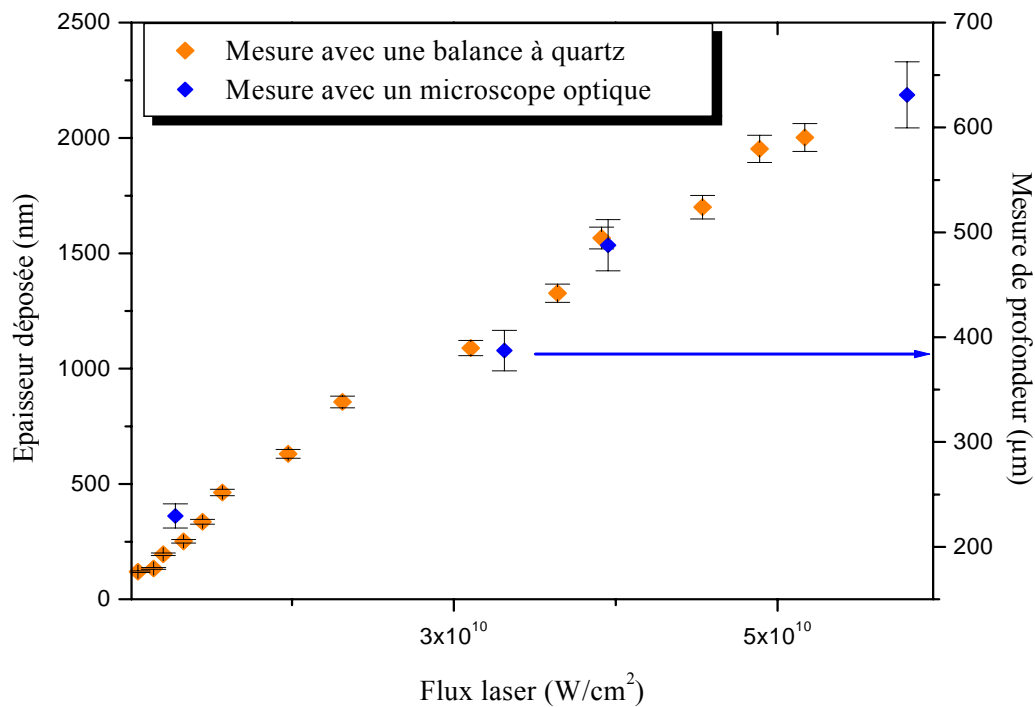
**Figure (III-2) :** Épaisseur mesurée par la microbalance en fonction de l'intensité laser et profondeur des impacts mesurée par un microscope optique à réflexion, pour une cible de silicium



**Figure (III-3) :** Epaisseur mesurée par la microbalance en fonction de l'intensité laser et profondeur des impacts mesurée par un microscope optique à réflexion, pour une cible de titane



**Figure (III-4) :** Epaisseur mesurée par la microbalance en fonction de l'intensité laser et profondeur des impacts mesurée par un microscope optique à réflexion pour une cible de tungstène



**Figure (III-5) :** Epaisseur mesurée par la microbalance en fonction de l'intensité laser et profondeur mesurée par un microscope optique à réflexion pour une cible de zirconium.

Les résultats donnés par les courbes en figure (III-1), (III-2), (III-3), (III-4) et (III-5) montrent un comportement similaire pour toutes les cibles utilisées, à savoir, une augmentation rapide de la quantité de masse ablatée avec la fluence laser à basse intensité, suivie par un plateau de saturation, puis au-delà d'une certaine intensité laser seuil, dépendant de la nature de la cible, une augmentation rapide de la quantité de masse évaporée. La cible de zirconium ne présente pas le même comportement dans la mesure ou la quantité de matière mesurée par la balance varie plutôt linéairement avec l'intensité laser.

En approximant les courbes obtenues par la relation (I-21) chapitre I, nous obtenons deux régimes d'ablation suivant la gamme de flux laser et cela pour les cibles de carbone, de silicium, de titane et de tungstène. Ces courbes montrent que différents mécanismes physiques sont responsables de l'ablation. A basse intensité, l'énergie absorbée par la vapeur reste faible et de ce fait la température de surface de la cible augmente avec l'intensité laser. Lorsque la densité de vapeur devant la cible devient importante, l'absorption de l'énergie laser n'y est plus négligeable. L'énergie laser transférée à la cible diminue et la température de surface également, conduisant à une réduction de la quantité de masse ablatée. En fait, dans ce cas, un régime d'autorégulation s'établit pour lequel, la température de surface se sature à une

certaine valeur, faisant en sorte que la quantité de masse ablatée se sature également. Au-delà d'un certain seuil, dépendant de la nature de la cible, la quantité de masse évaporée augmente brusquement. Cette augmentation est due à un nouveau régime d'évaporation comme nous le verrons par la suite.

Les intensités seuil déterminées au moyen de la balance à quartz sont autour de  $2 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>, de  $3,5 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>, de  $3 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup> et de  $6 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup> avec une précision autour de  $10^9$  W/cm<sup>2</sup>, pour les cibles de carbone, silicium, titane et tungstène respectivement.

Il est également intéressant de remarquer que la quantité de matière éjectée, même si le régime d'ablation est le même, dépend des paramètres thermodynamiques des cibles comme le coefficient d'absorption, l'enthalpie d'évaporation et la conductivité thermique. La cible de tungstène présentant le plus faible taux d'ablation.

La cible de zirconium présente un comportement tout à fait différent dans la mesure où la quantité de masse évaporée croît de façon quasi-linéaire avec l'intensité laser. La faible valeur du coefficient d'absorption du zirconium à 355 nm peut en grande partie expliquer cela, comme nous le verrons par la suite.

Nous avons également utilisé un microscope optique à réflexion pour la mesure des profondeurs des cratères obtenus sur cible, afin de corréliser les résultats obtenus au moyen de la balance à quartz et les profondeurs de cratères. Il ne nous a pas été possible de faire ces mesures sur la cible de carbone, mais sur l'ensemble des autres cibles, sur les quelques points de mesure, une très bonne corrélation a été obtenue entre les deux techniques, tel que c'est montré sur les figures (III-2)-(III-5).

En conclusion, l'évolution de la quantité de masse ablatée en fonction de l'intensité laser présente le même comportement pour toutes les cibles étudiées, mis à part la cible de zirconium, montrant une évolution quasi-linéaire. Ceci peut être attribué à la valeur du coefficient d'absorption du zirconium à 355nm, donnant une longueur d'absorption trois à quatre fois plus grande que pour les autres cibles.

Les travaux menés dans le cas du silicium monocristallin [54, 55, 58, 60, 68, 96], donnant la variation des profondeurs des impacts (ou du volume des cratères) en fonction du flux laser (plus de  $10^9$  W/cm<sup>2</sup>) ou dans le cas de cible de carbone graphite et d'YBCO [61, 62] donnant la variation de la masse ablatée avec le flux laser, ont donné des courbes similaires à celles obtenues pour les cibles de carbone, de silicium, de titane et de tungstène. L'explication donnée est que pour les lasers nanoseconde et pour des flux laser compris dans la gamme de  $10^9$  à  $10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>, l'évaporation normale ne peut être le seul mécanisme responsable de

l'éjection de matière de la cible. Dépassé un certain flux seuil, un autre mécanisme thermique est produit, le plus probable étant l'explosion de phase ou ébullition explosive. La réaugmentation de la quantité de matière éjectée de la cible dans le cas d'une cible de silicium a été expliquée par l'explosion de phase, lorsque la température de surface atteint une valeur proche de la température critique du matériau cible ( $T_s \approx 0.9 T_c$ ). Dans cette situation, il se forme dans le bain liquide, des bulles de vapeur, le « bain liquide » se transformant progressivement en un mélange de liquide surchauffé et de bulles de vapeur. Ceci aura pour première conséquence une diminution du coefficient d'absorption (augmentation de la longueur d'absorption) le milieu étant le siège d'une transition liquide surchauffé- liquide diélectrique. La transparence au faisceau laser permet la formation et la croissance d'une couche de liquide surchauffé et une plus grande intensité laser à l'interface liquide solide durant l'impulsion laser. Par conséquent la couche de liquide surchauffé est plus épaisse et reste près de l'état critique une longue durée après l'impulsion laser (une durée de 200-300ns après l'impulsion laser [54]). La vapeur formée par les fluctuations en densité proche de l'état critique peut mener à la nucléation de bulles dans la couche liquide surchauffé, une fois ces bulles formées, et si leur taille est de l'ordre du rayon critique, elles s'élargissent rapidement, menant à une ébullition explosive et à l'éjection de matière sous forme de particules. A ce moment là, lorsque la cible a atteint son état critique où les deux phases liquide et gazeuse coexistent, la température de surface du matériau cible approche la température thermodynamique critique de ce matériau.

Il n'existe pas de modèle décrivant l'ablation en situation d'explosion de phase, néanmoins des approches, d'un point de vue cinétique ou thermodynamiques existent [66]. Le traitement thermodynamique de Lu [66] montre que l'explosion de phase se produit lorsqu'un plasma est créé dans la vapeur, provoquant une importante augmentation de la pression de vapeur. La phase plasma est produite par claquage diélectrique dans la vapeur et correspond à des valeurs de température électronique comparables au potentiel d'ionisation. Dans la plupart des cas, cette température est bien supérieure à la température thermodynamique critique du matériau.

D'un point de vue cinétique, les calculs montrent que les bulles formées dans le bain liquide, doivent d'abord atteindre un rayon critique, avant d'être expulsées, ce qui impose d'une part, un temps de formation (souvent supérieur à la durée de l'impulsion laser) et une profondeur minimum du bain fondu, pouvant permettre à la bulle de vapeur d'atteindre son rayon critique avant d'être expulsée.

Pour la cible de zirconium, étant donné son faible coefficient d'absorption, le mécanisme thermique probable responsable de l'éjection de matière peut être attribué au chauffage en

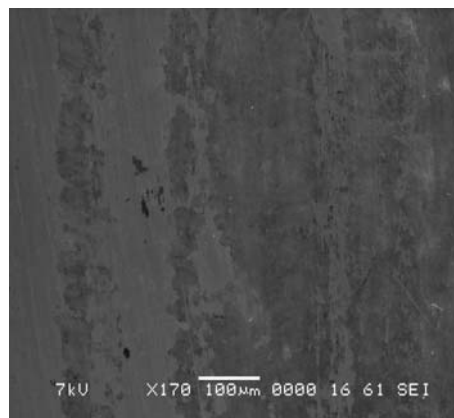
volume. Les travaux de Singh et al [47] montrent que le chauffage en volume est un phénomène se produisant pour des matériaux ayant un faible coefficient d'absorption. Ce phénomène est d'autant plus important que l'énergie laser est élevée. Ce mécanisme peut expliquer en partie le comportement de la cible de zirconium.

### **III-2 Morphologie des impacts par imagerie MEB**

Pour montrer la morphologie des impacts à différents flux laser et à différent nombre de tirs, des images, avec un microscope électronique à balayage (MEB Jeol JSM-6360LV), ont été prises pour quatre cibles. La cible de carbone n'a pu être analysée par le MEB, du fait de la difficulté de localisation des impacts sur la cible.

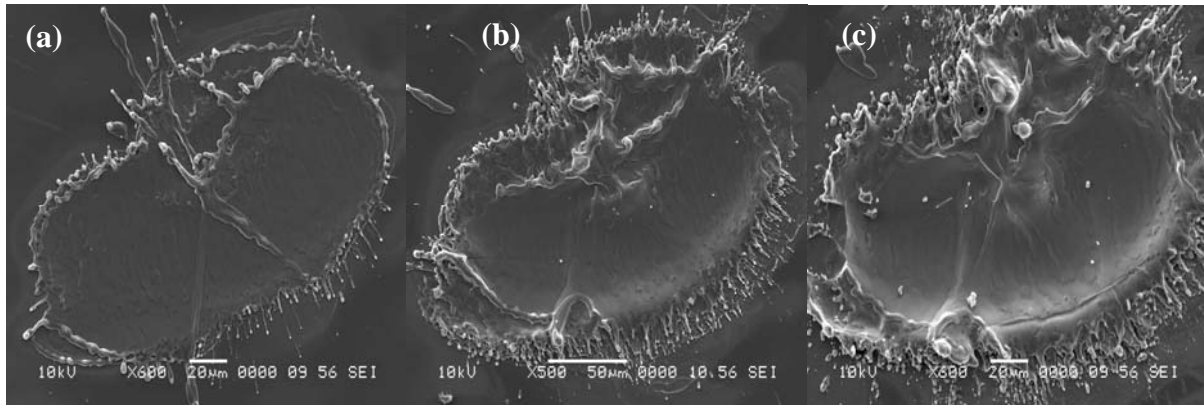
#### **• Cible de silicium**

La cible de silicium a une surface sans impact donnée en figure (III-6)



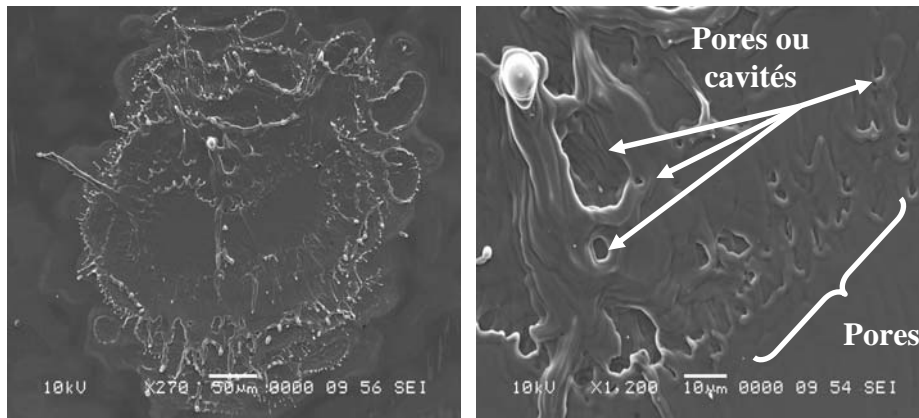
**Figure (III-6) :** Imagerie MEB de la surface de la cible de silicium avant impact

Les images prises à différents flux laser et à différents nombres de tirs montrent que pour un flux laser de  $10^9 \text{W/cm}^2$  (figure (III-7)), la surface de l'impact est ondulée avec des jets de matière sur le bord de l'impact. Ces jets sont expliqués par la pression exercée sur le bain fondu par la vapeur. La morphologie du cratère ne change pas avec le nombre de tirs, mis à part une plus grande profondeur et une importante masse sur les bords, provenant de l'expulsion de matière du bain fondu.

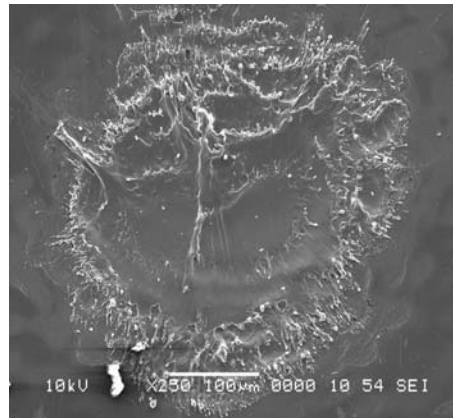


**Figure (III-7) :** Imagerie MEB pour la cible de silicium, à un flux laser de  $10^9$  W/cm<sup>2</sup> pour différents nombres de tirs laser : (a) 1, (b) 5 et (c) 10

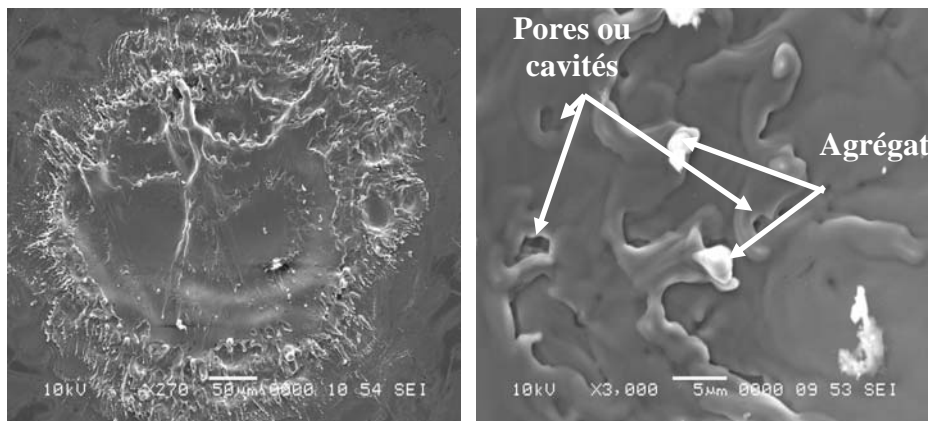
Lorsque le flux laser est de  $4 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>, la morphologie de l'impact (figure (III-8)) diffère totalement de la morphologie des impacts réalisés à faible intensité. En plus des jets de matière aux bords de la surface de l'impact, le centre de l'impact présente des pores et des cavités dont l'origine peut être attribuée à la nucléation de bulles homogènes. Pour un même flux en augmentant le nombre de tirs laser, la morphologie de l'impact reste la même, L'impact présentant toujours des pores et des cavités.



**Figure (III-8) :** Imagerie MEB pour la cible de silicium, pour deux agrandissements différents avec un 1 tir laser et un flux laser de  $4 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>

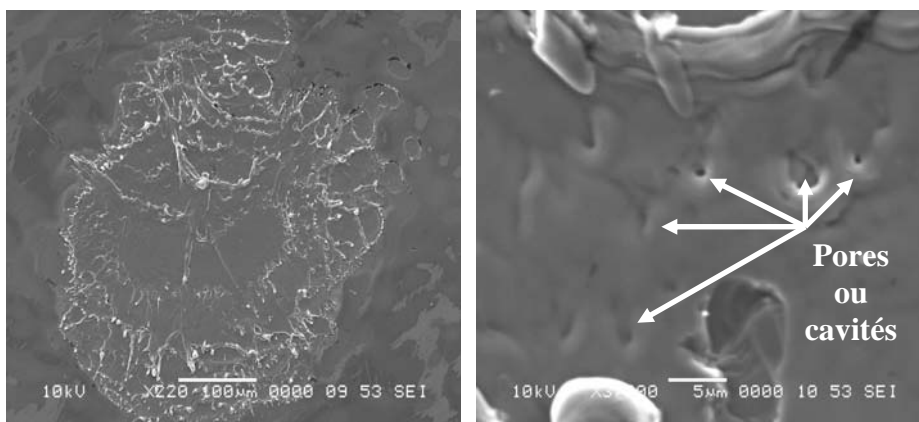


**Figure (III-9) :** Imagerie MEB pour la cible de silicium, avec 5 tirs laser et un flux laser de  $4 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$

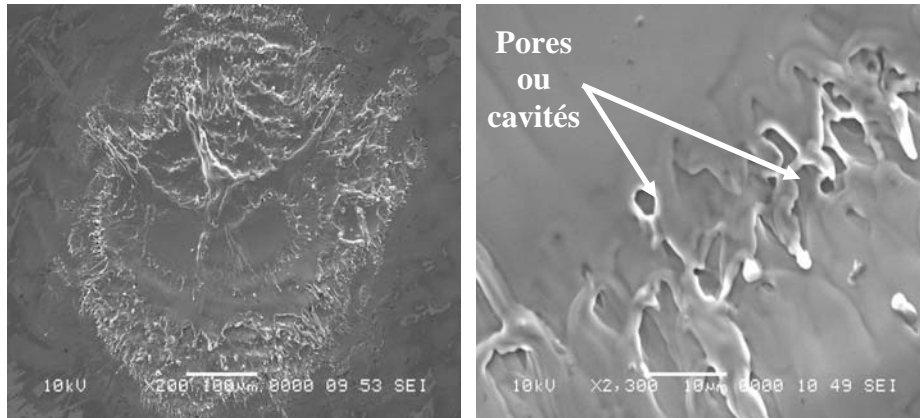


**Figure (III-10) :** Imagerie MEB pour la cible de silicium, pour deux agrandissements différents avec 10 tirs laser et un flux laser de  $4 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$

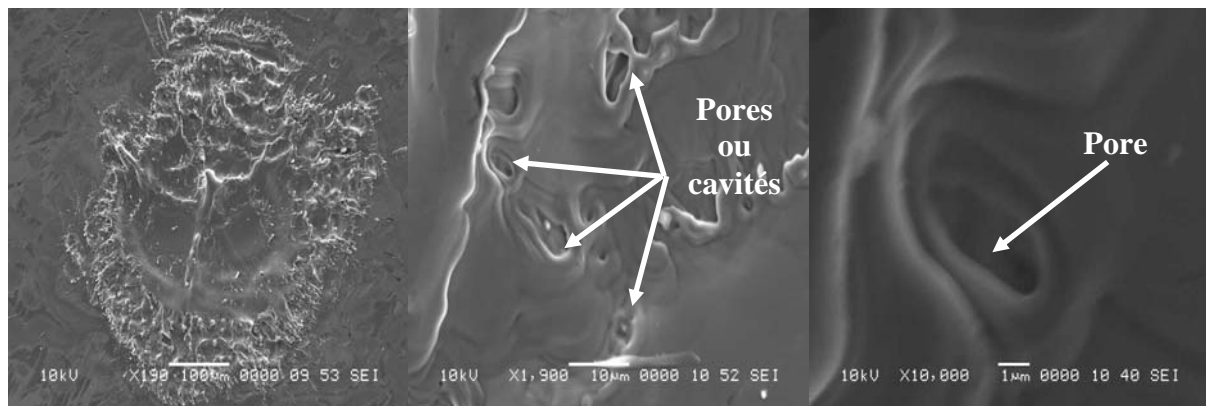
Lorsque le flux laser est de  $6 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$  (figures de (III-11) à (III-13)) le nombre de pores et de cavités augmente aussi. L'impact a la même morphologie que pour un flux de  $4 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$  avec un nombre de pores plus importants.



**Figure (III-11) :** Imagerie MEB pour la cible de Silicium, pour deux agrandissements différents avec 1 tir laser et un flux laser de  $6 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$

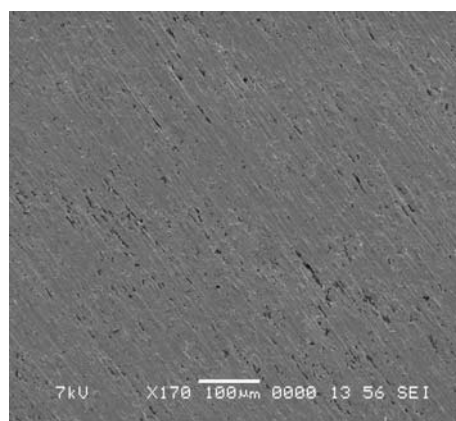


**Figure (III-12) :** Imagerie MEB pour la cible de silicium, pour deux agrandissements différents avec 5 tirs laser et un flux laser de  $6 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$



**Figure (III-13) :** Imagerie MEB pour la cible de silicium, pour différents agrandissements avec 10 tirs laser et un flux laser de  $6 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$

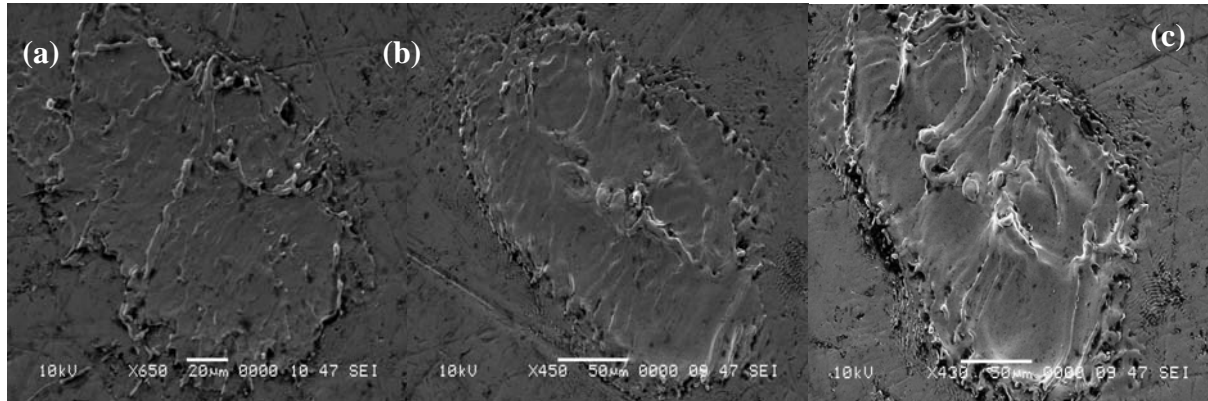
### • Cible de titane



**Figure (III-14) :** Imagerie MEB de la surface de la cible de titane avant impact

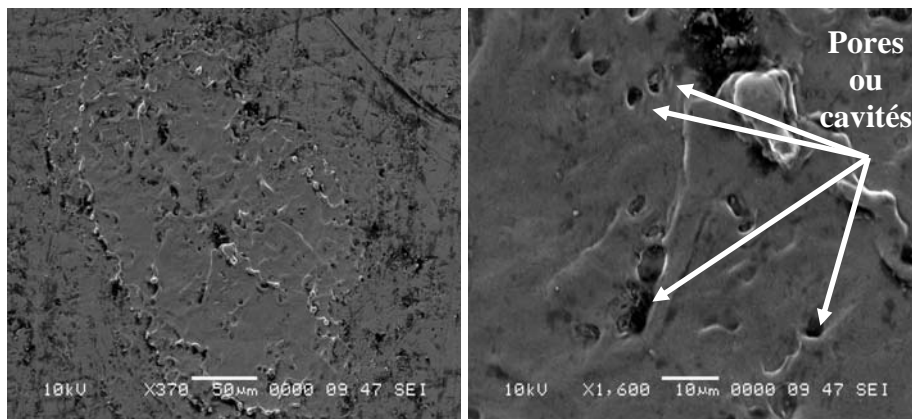
Les images prises à différents flux laser et a différents nombre de tirs montrent que pour un flux laser de  $3 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ , de la même façon que pour la cible de silicium, la surface de

l'impact est ondulée avec des jets de matière sur les bords de l'impact, dus à l'expulsion de matière du bain fondu par la pression de vapeur. Plus le nombre de tirs augmente et plus la matière est creusée et plus le bain fondu expulsé est important (figures de (III-15)).

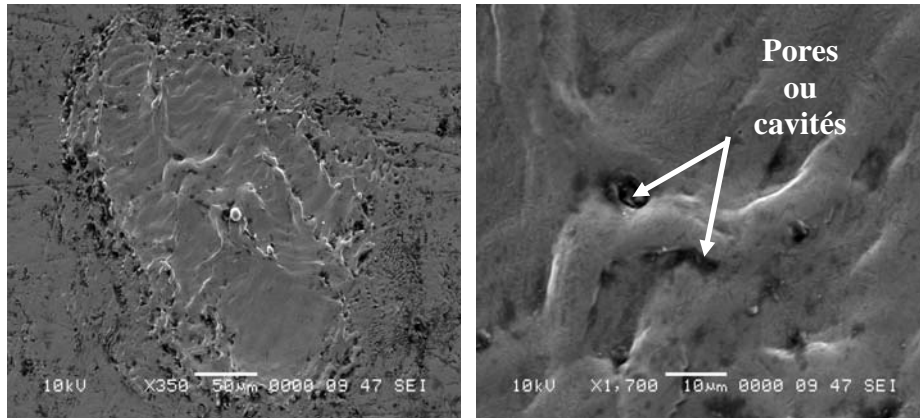


**Figure (III-15)** : Imagerie MEB pour la cible de titane, à un flux laser de  $3 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$  pour différents nombres de tirs laser : (a) 1, (b) 5 et (c) 10

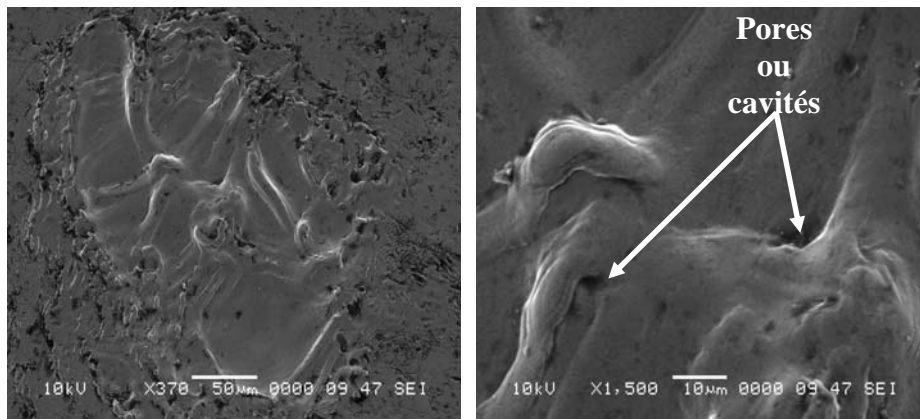
Pour un flux laser de  $3 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$  la morphologie de l'impact vue par le MEB diffère de la morphologie de l'impact avec un flux de  $3 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ . L'impact présente un certain nombre de pores et des cavités indépendamment du nombre de tirs laser.



**Figure (III-16)** : Imagerie MEB pour la cible de titane, pour deux agrandissements différents avec 1 tir laser et un flux laser de  $3 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$

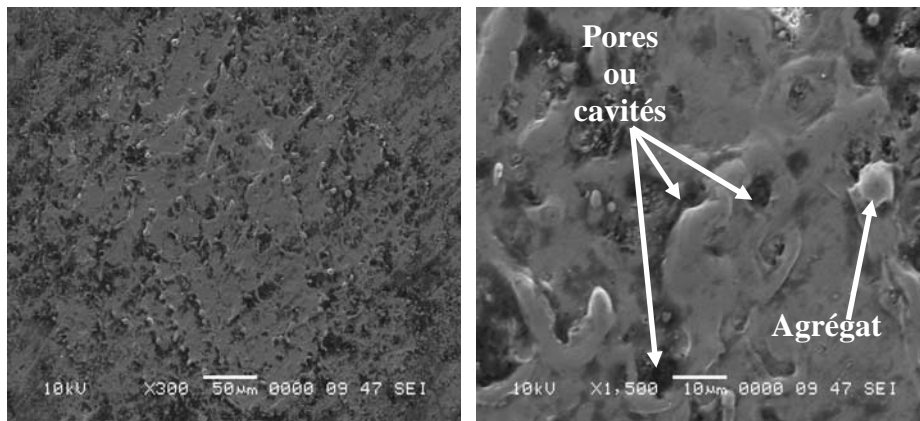


**Figure (III-17) :** Imagerie MEB pour la cible de titane, pour deux agrandissements différents avec 5 tirs laser et un flux laser de  $3 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$

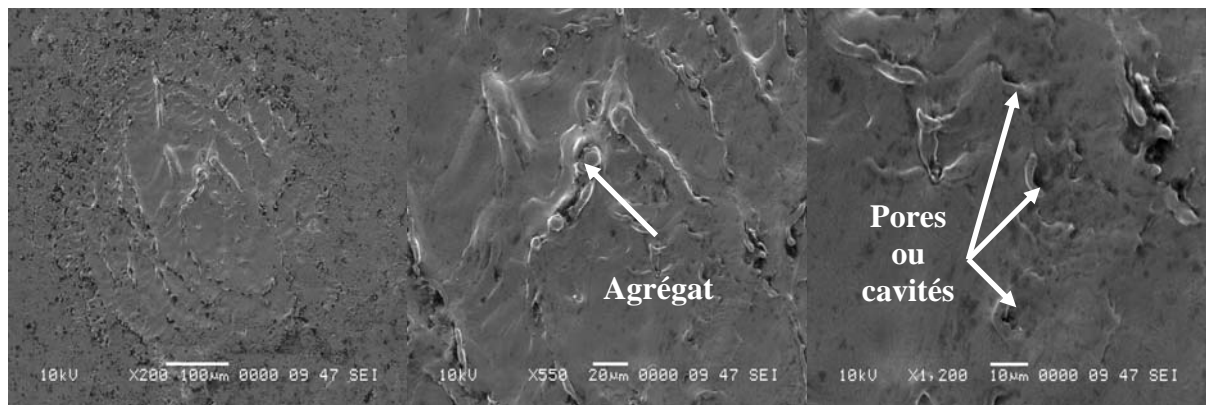


**Figure (III-18) :** Imagerie MEB pour la cible de titane, pour deux agrandissements différents avec 10 tirs laser et un flux laser de  $3 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$

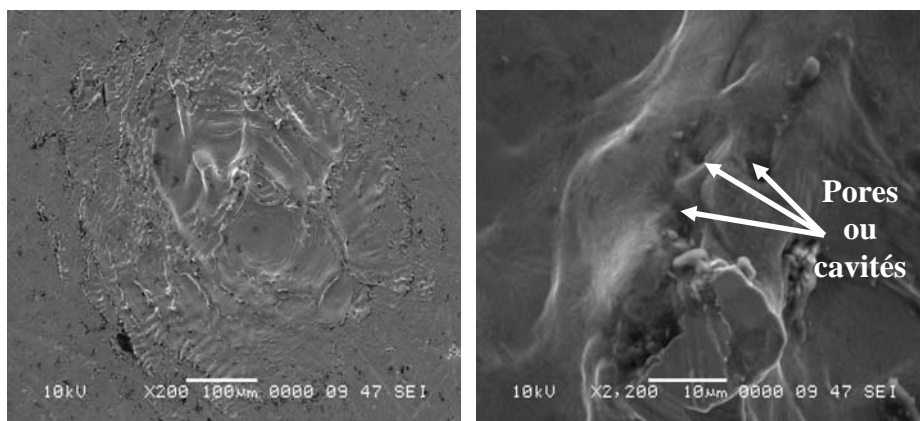
Pour un flux laser plus important de  $8 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$  (figures (III-19) à (III-21)), l'impact présente la même morphologie que pour un flux de  $3 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$  avec un nombre de pores plus important. De même que pour tous les impacts laser le nombre de tirs n'influe pas sur le changement de la morphologie de l'impact. Seulement en augmentant le nombre de tirs laser, la formation de pores et de cavités par un tir laser peuvent être affectée par le tir suivant.



**Figure (III-19) :** Imagerie MEB pour la cible de titane, pour deux agrandissements différents avec 1 tir laser et un flux laser de  $8 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$

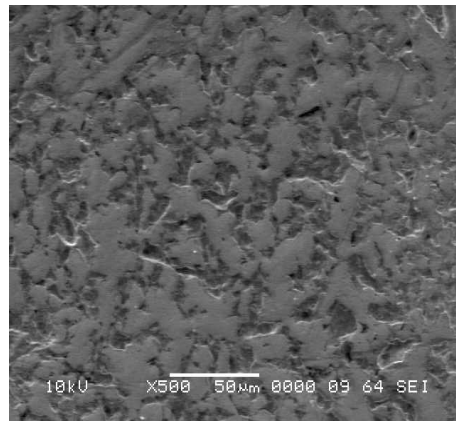


**Figure (III-20) :** Imagerie MEB pour la cible de titane, pour différents agrandissements avec 5 tirs laser et un flux laser de  $8 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$



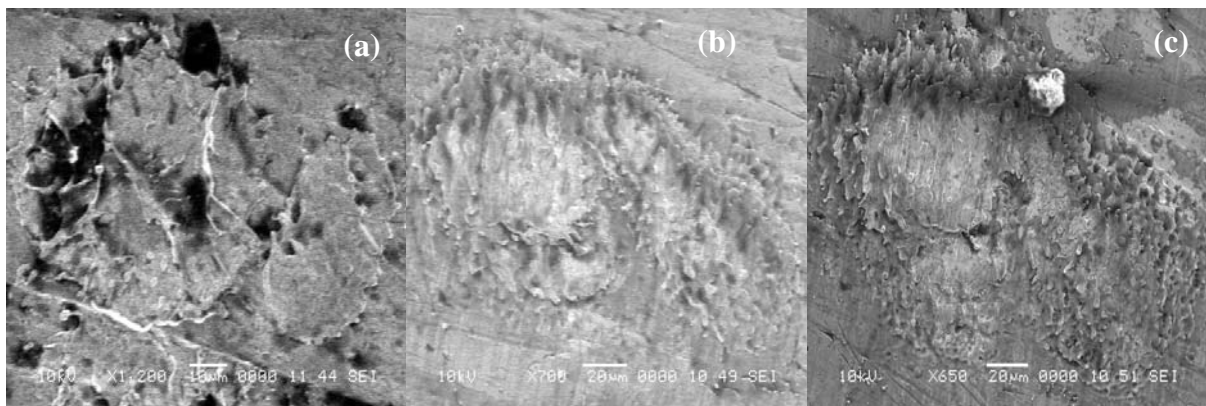
**Figure (III-21) :** Imagerie MEB pour la cible de titane, pour deux agrandissements différents avec 10 tirs laser et un flux laser de  $8 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$

### • Cible de tungstène



**Figure (III-22)** : Imagerie MEB de la surface de la cible de tungstène avant impact

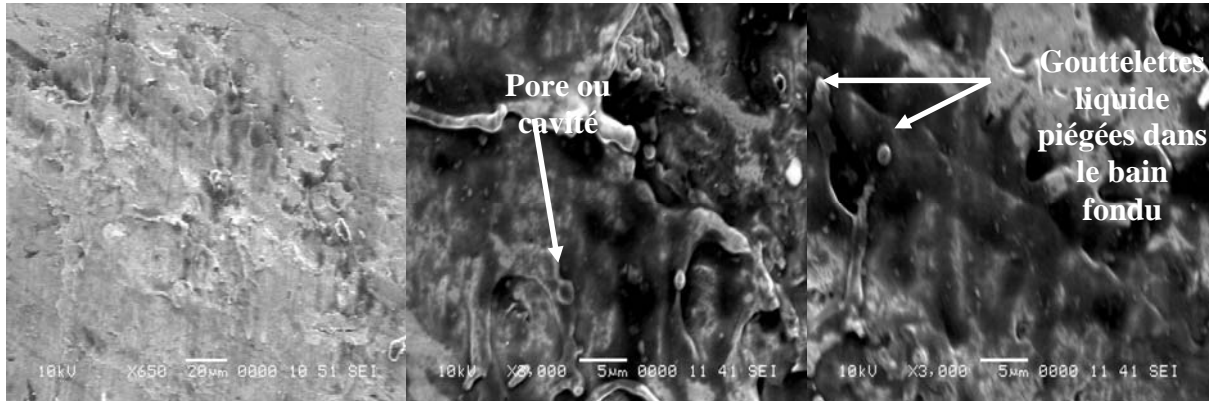
De la même façon que pour les cibles de silicium et de titane la morphologie des impacts à des flux bas de l'ordre de  $10^9$  W/cm<sup>2</sup> montre une surface d'impact sans pores ni cavités (figure (III-23)). La morphologie de la cible de tungstène même polie et avant irradiation (figure (III-22)) présente une certaine rugosité, c'est pour cette raison que les images MEB pour cette cible ne sont pas de la même qualité que pour les autres cibles (silicium et titane).



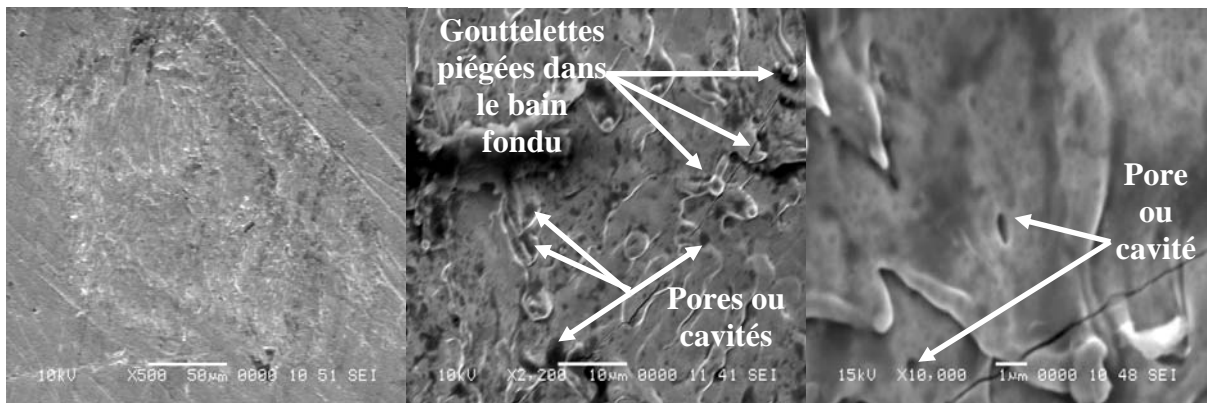
**Figure (III-23)** : Imagerie MEB pour la cible de tungstène à un flux laser de  $6 \times 10^9$  W/cm<sup>2</sup> pour différents nombres de tirs laser : (a) 1, (b) 5 et (c) 10

Lorsque le flux laser augmente et atteint un flux de  $5 \times 10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>, l'image MEB de l'impact pour un tir (figure (III-24)) montre une morphologie différente de celle avec un flux laser de  $6 \times 10^9$  W/cm<sup>2</sup>. Des pores sont présents sur la surface de l'impact. De même que pour les autres cibles, le nombre de tirs ne contribue pas au changement de la morphologie de l'impacte pour un même flux laser. Les figures (III-24) à (III-26) présentent une morphologie

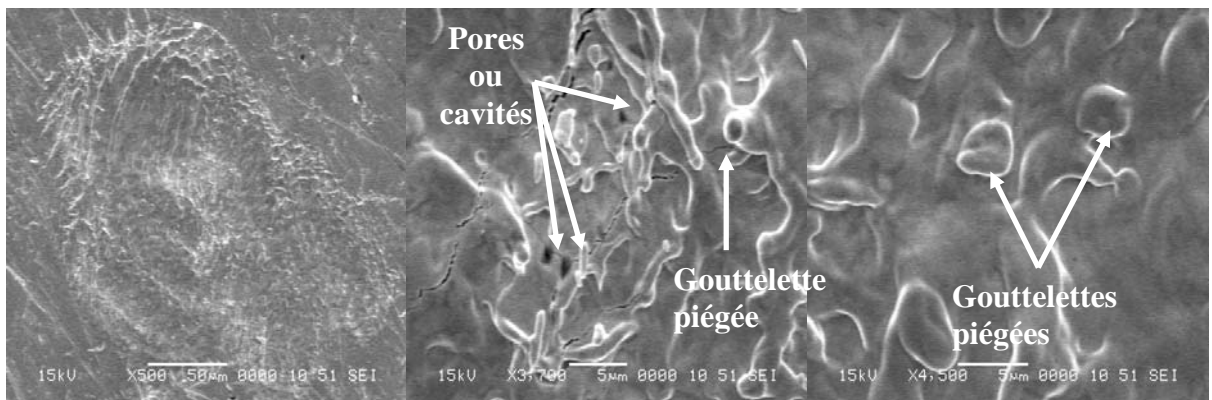
assez particulière, des gouttelettes sont observées sur ces images MEB. Il se pourrait que ces dernières soient piégées dans le bain fondu et qu'elles n'ont pas eu assez de temps pour quitter le bain fondu et laissant derrière elles des pores ou des cavités.



**Figure (III-24) :** Imagerie MEB pour la cible de tungstène, pour différents agrandissements avec 1 tir laser et un flux laser de  $5 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$

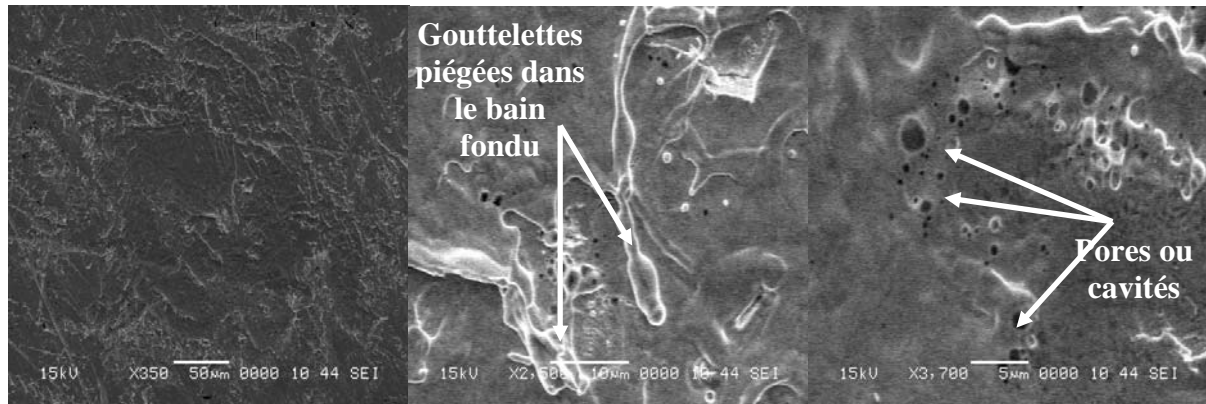


**Figure (III-25) :** Imagerie MEB pour la cible de tungstène, pour différents agrandissements avec 5 tirs laser et un flux laser de  $5 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$

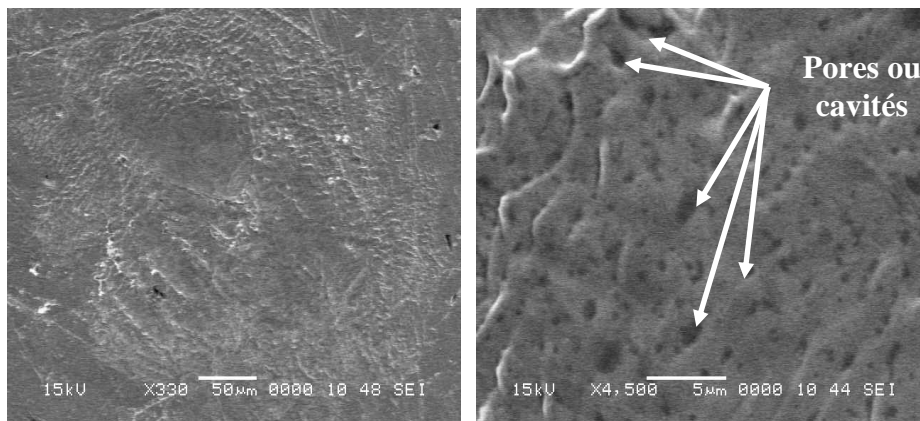


**Figure (III-26) :** Imagerie MEB pour la cible de tungstène, pour différents agrandissements avec 10 tirs laser et un flux laser de  $5 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$

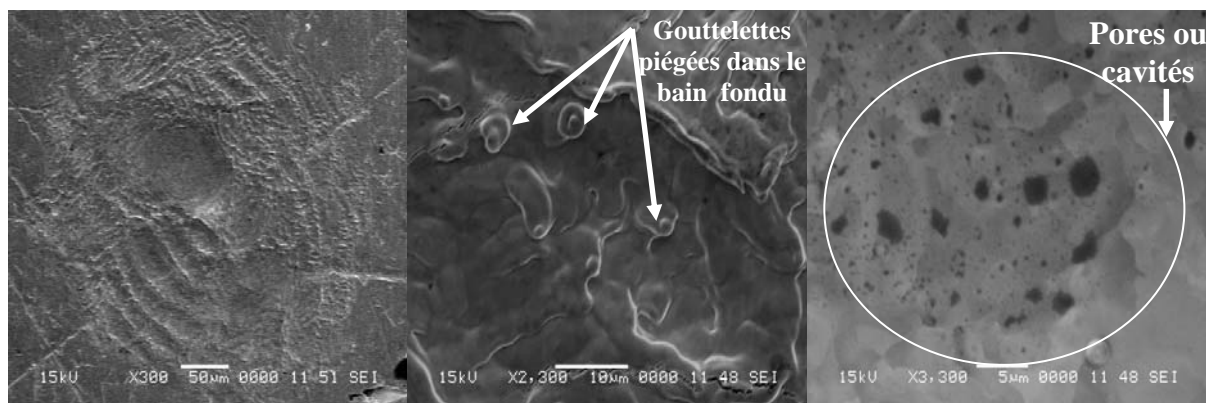
Pour un flux laser plus important de  $2 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$  (figures (III-27) à (III-29)), l'impact présente la même morphologie que pour un flux de  $5 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$  avec un nombre de pores plus important.



**Figure (III-27) :** Imagerie MEB pour la cible de tungstène, pour différents agrandissements de 50 $\mu\text{m}$ , 10 $\mu\text{m}$  et 5 $\mu\text{m}$ , avec 1 tir laser et un flux laser de  $2 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$

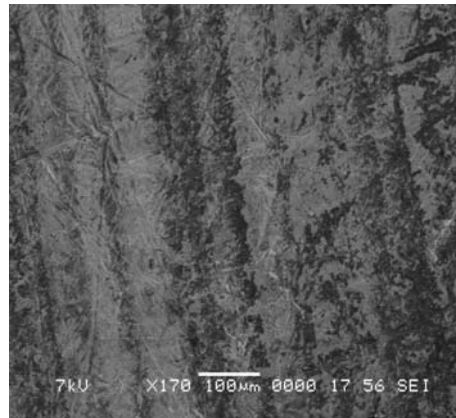


**Figure (III-28) :** Imagerie MEB pour la cible de tungstène, pour deux agrandissements différents avec 5 tirs laser et un flux laser de  $2 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$



**Figure (III-29) :** Imagerie MEB pour la cible de tungstène, pour différents agrandissements avec 10 tirs laser et un flux laser de  $2 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$

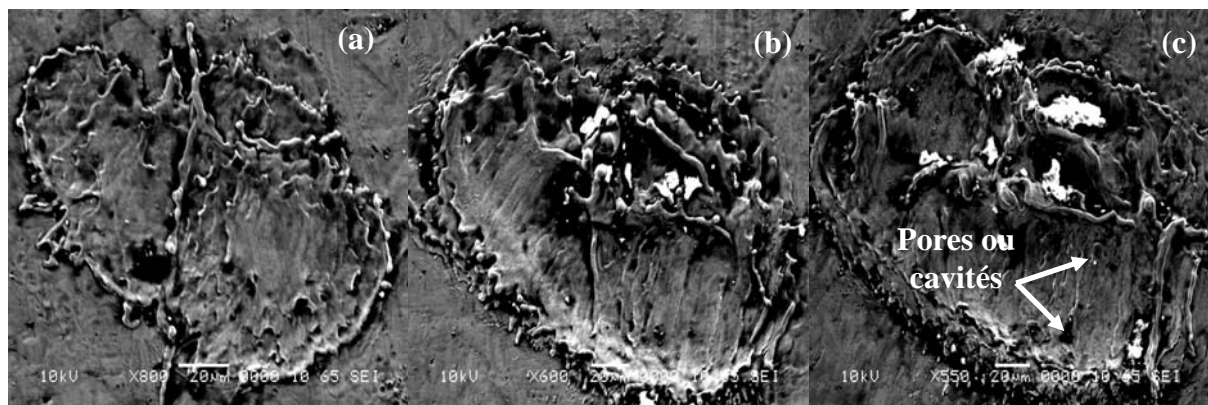
### • Cible de zirconium



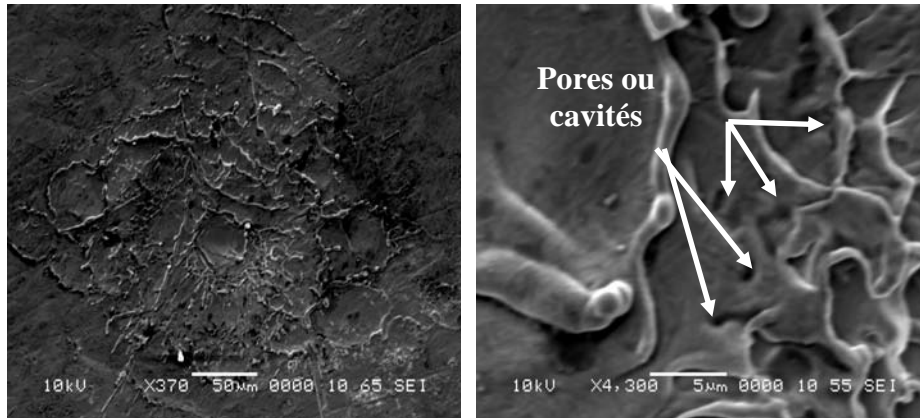
**Figure (III-30) :** Imagerie MEB de la surface de la cible de zirconium avant impact

La morphologie des impacts pour une cible de zirconium, présente pour tout les flux laser, des pores et des cavités ainsi que des ondulations à la surface de l'impact. Sur le bord de l'impact nous retrouvons la même morphologie que pour les autres cibles. A la différence des autres cibles ou à partir d'un certain flux laser la morphologie de l'impact change, la cible de zirconium ne fait pas apparaître de différence notable de morphologie de l'impact fait par laser pour les différentes valeurs de flux laser.

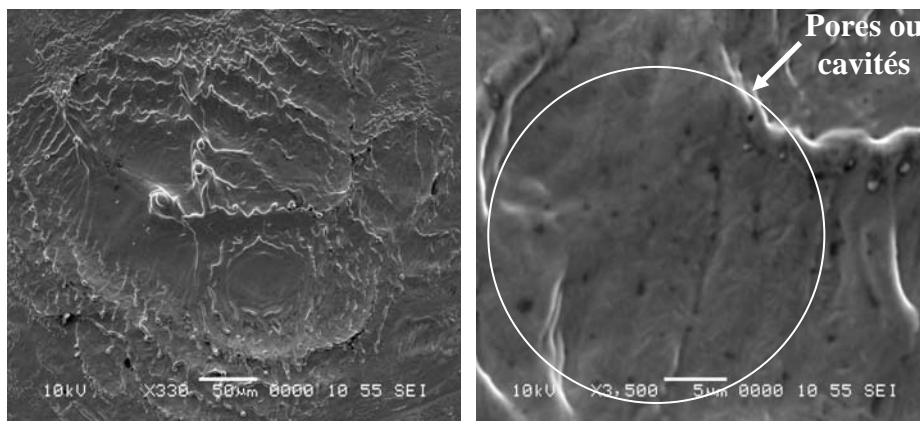
De même que pour les autres cibles pour un flux laser donné, (figures (III-31)) en variant le nombre de tirs laser la morphologie de l'impact reste inchangé.



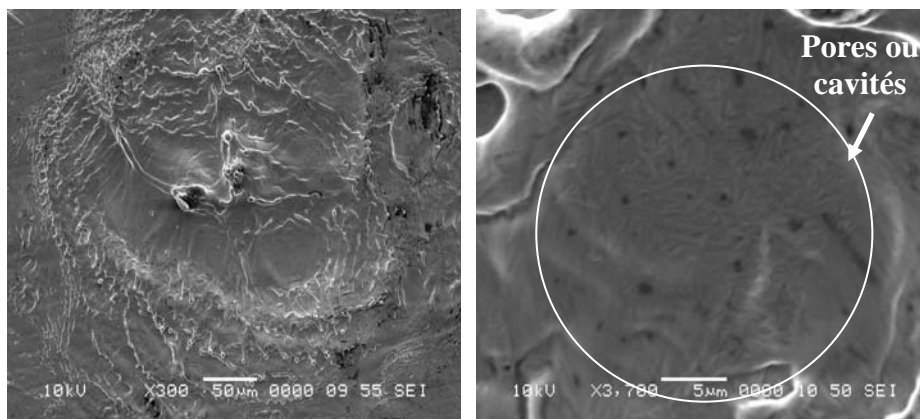
**Figure (III-31) :** Imagerie MEB pour la cible de zirconium à un flux laser de  $4 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$  pour différents nombres de tirs laser : (a) 1, (b) 5 et (c) 10



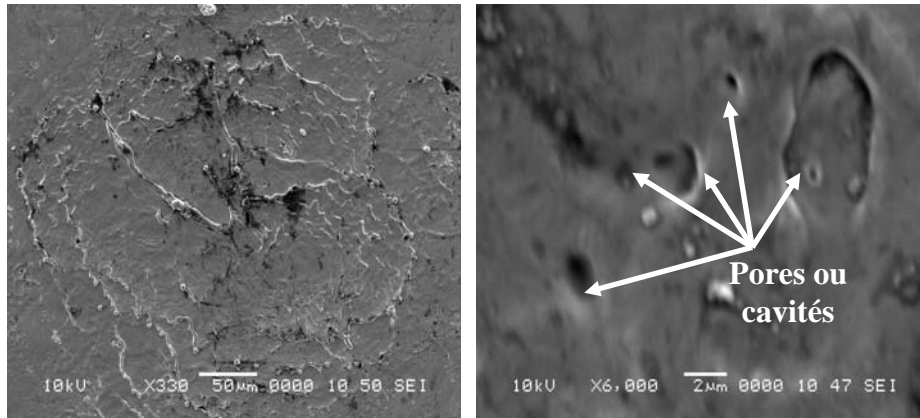
**Figure (III-32) :** Imagerie MEB pour la cible de zirconium, pour deux agrandissements différents avec 1 tir laser et un flux laser de  $5 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$



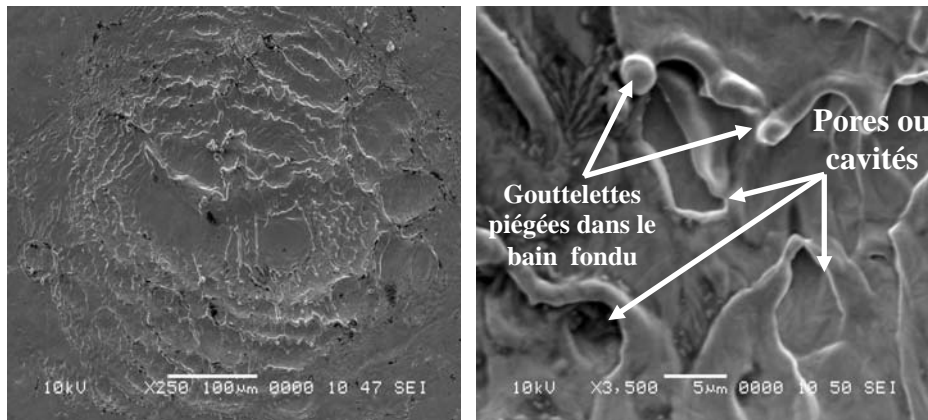
**Figure (III-33) :** Imagerie MEB pour la cible de zirconium, pour deux agrandissements différents avec 5 tirs laser et un flux laser de  $5 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$



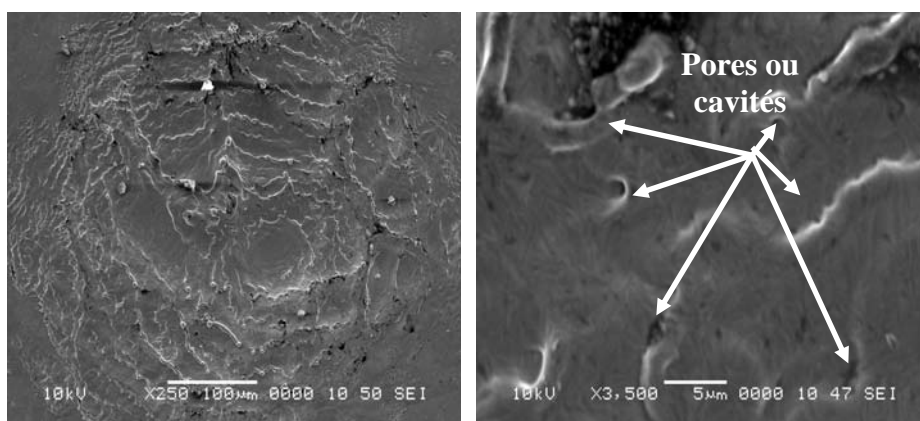
**Figure (III-34) :** Imagerie MEB pour la cible de zirconium, pour deux agrandissements différents avec 10 tirs laser et un flux laser de  $5 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$



**Figure (III-35) :** Imagerie MEB pour la cible de zirconium, pour deux agrandissements différents avec 1 tir laser et un flux laser de  $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>



**Figure (III-36) :** Imagerie MEB pour la cible de zirconium, pour deux agrandissements différents avec 5 tirs laser et un flux laser de  $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>



**Figure (III -37):** Imagerie MEB pour la cible de zirconium, pour deux agrandissements différents avec 10 tirs laser et un flux laser de  $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>

Pour conclure, les images obtenues par le MEB, pour les différentes cibles utilisées confirment les résultats trouvés avec une balance à quartz. A faible intensité laser, mise à part la cible de zirconium, les impacts présentent la même morphologie, à savoir des jets de matière sur la périphérie et des ondulations au centre de l'impact. A haute intensité laser, le centre de l'impact est caractérisé par des cavités et des pores. Pour toute la gamme d'intensité laser utilisée, les images montrent que la morphologie de l'impact pour les quatre cibles ne change pas avec le nombre de tirs laser. Seule la profondeur de l'impact change et cela pour un même flux laser.

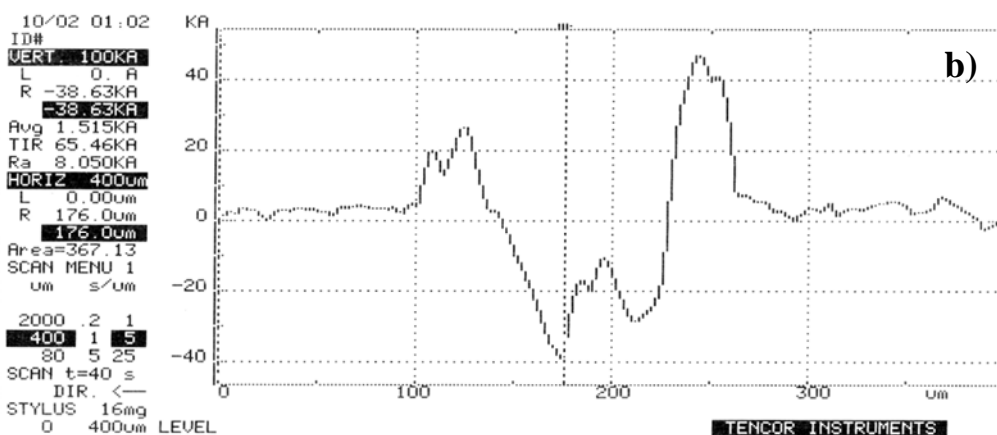
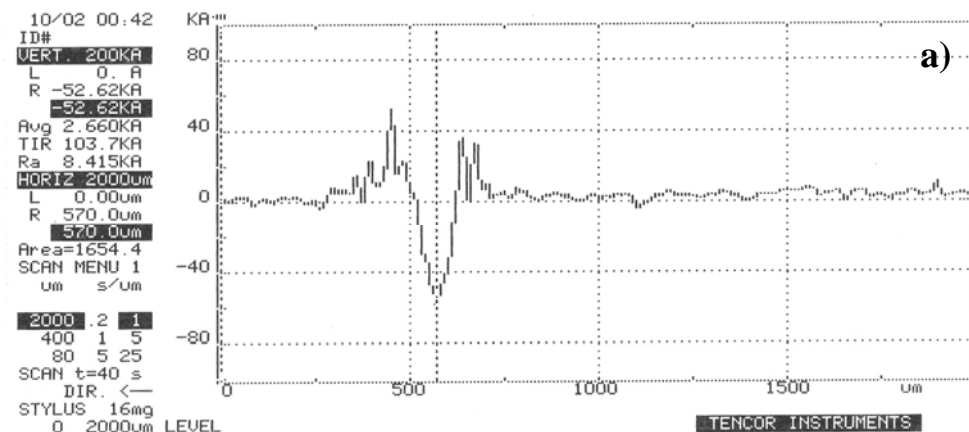
En comparant nos résultats avec les travaux de Craciun et al [52, 59] dans le cas de l'ablation de cible de germanium et de silicium par un laser Nd :YAG émettant sa longueur d'onde fondamentale (1064nm) et ses harmoniques (532nm et 266nm). Les images obtenus [52, 59] ont montré que pour la longueur d'onde 266nm et une cible de silicium, à un tir laser ou plusieurs tirs laser et un flux de  $10^9$  W/cm<sup>2</sup> la morphologie de l'impact est la même et présente des ondulations sur la surface causées par la pression de recul sur le bain fondu lors de l'interaction laser cible. Lorsque le flux laser augmente et dépasse  $10^{10}$  W/cm<sup>2</sup>, la surface de l'impact change de morphologie et présente des cavités qui sont associées aux sites de nucléation de bulles qui se sont échappées du bain fondu. Par contre pour la cible de germanium et de silicium pour une longueur d'onde de 1064nm, du fait que cette longueur d'onde est peu absorbée ce qui donne une longueur d'absorption grande, la présence de cavités à la surface de l'impact pour des flux laser de  $10^9$  W/cm<sup>2</sup> et plus ont été attribuées au mécanisme de chauffage en volume.

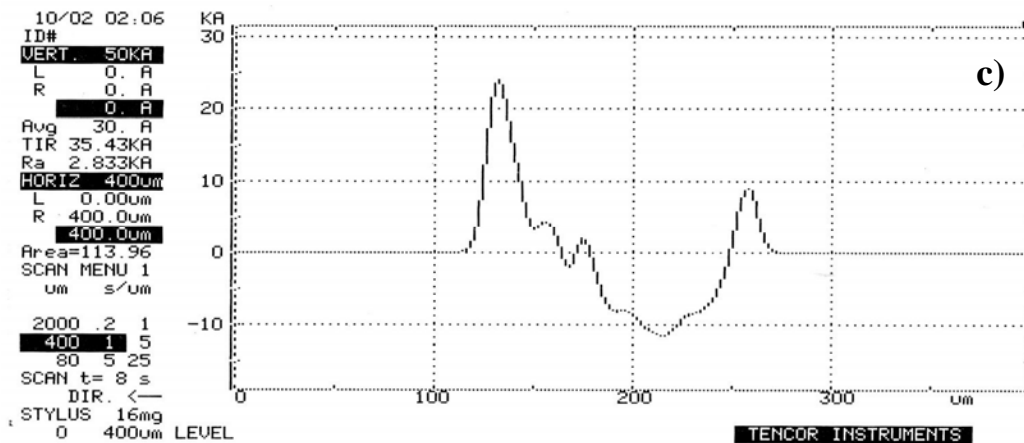
Pour conclure, l'observation, par microscopie électronique à balayage, des impacts laser sur différentes cibles, confirme les résultats obtenus au moyen de la microbalance à quartz. Au-delà d'une intensité seuil, le mécanisme d'évaporation passe d'un régime d'évaporation normale à un régime d'explosion de phase. La subite augmentation du taux de masse éjectée et la présence de pores et de cavités sur les images avec un microscope électronique à balayage confirment cette hypothèse. La cible de zirconium présente un comportement conforme à un chauffage en volume s'expliquant par une plus grande longueur d'absorption à la longueur d'onde de 355nm.

### III-3 Profil des impacts

Nous avons tenté de mesurer la profondeur des cratères au moyen d'un profilomètre à stylet de type Tencor Alpha-Step. Trois profils typiques de cratères obtenus sur cible de silicium et de titane sont montrés sur la figure (III-38). Ces profils sont caractérisés par deux importantes « bosses » sur les bords des cratères représentant la matière éjectée sur la périphérie du cratère du fait de la pression de vapeur sur le bain fondu, et un fond de cratère présentant également des ondulations dues à la rugosité de la surface et/ou à la non uniformité de l'éclairement.

Mis à part, les impacts réalisés à basse intensité laser qui présentent une relative symétrie, il est difficile au moyen de ces mesures de remonter à la quantité de matière éjectée, d'autant plus que les cavités et les pores, bien visibles au moyen du microscope électronique à balayage, sont de tailles comparables sinon plus petites que le diamètre du stylet utilisé (12.5 $\mu\text{m}$ ).





**Figure (III-38) :** profil de l'impact pour : a) une cible de zirconium avec un tir laser et un flux de  $9 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ ; b) une cible de titane avec un tir laser et un flux  $10^{10} \text{ W/cm}^2$ ; c) une cible de silicium avec un tir laser et un flux de  $1,5 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$  cible de silicium

### III-4 Mesures avec un collecteur de charge

Les mesures avec un collecteur de charge nous ont permis :

1. de remonter au courant ionique de tungstène et de zirconium ainsi qu'aux énergies cinétiques des ions et cela à partir des signaux visualisés sur l'oscilloscope et dont la forme est donnée au chapitre II figure (II-10).

A partir de ce qui a été rapporté au chapitre II (paragraphe (II-4)), le signal récolté par le collecteur nous donne la valeurs des temps  $t_n$  qui est, on le rappelle le temps qui marque l'arrivé des ions qui se trouvent sur le front avant du plasma (les ions les plus rapides et les plus énergétiques) et  $t_p$  qui est le temps ou le maximum d'ions qui arrivent sur le collecteur et qui ont une intensité maximum  $V_p$ .

A partir des valeurs de  $V_p$  mesurées pour différents flux laser, on remonte aux valeurs du courant  $I$  des ions sachant que la résistance de charge est de  $50\Omega$ .

Les valeurs des temps  $t_n$  et  $t_p$  nous donnent les valeurs des énergies cinétiques  $E_n$  et  $E_p$  des ions, on a :

$$E_{n,p} = \frac{1}{2} m \left( \frac{d}{t_{n,p}} \right)^2 \quad (\text{III-1})$$

Où  $m$  : la masse d'un ion

$d$  : la distance entre le collecteur et la cible

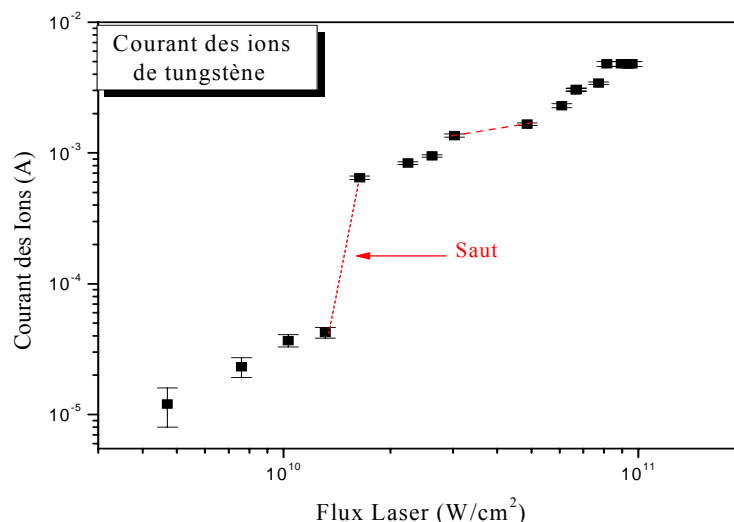
- de remonter à la température de surface pour les cinq cibles utilisées et cela en approximant le signal par une fonction de distribution Maxwellienne décalée (chapitre II (paragraphe II-4)).

Dans les paragraphes précédents, nous avons vu que mise à part la cible de zirconium, toutes les autres cibles semblent obéir au même mécanisme physique quant à l'éjection de matière. Aussi bien les mesures faites au moyen de la balance à quartz que l'imagerie par microscopie électronique confirment un comportement similaire pour les cibles de silicium, de titane et de tungstène. Aussi, dans ce qui suit nous nous limiterons à l'étude des seules cibles de zirconium et de tungstène. Le collecteur de charge est placé à approximativement 3cm face à ces deux cibles. La tension de polarisation du collecteur est prise pour toutes les mesures à 70 Volts.

### **III-4 1. Courant, énergie cinétique et nombre d'ions**

#### **• Cible de tungstène**

Les figures (III-39) et (III-40) montrent l'évolution du courant au pic de signal, et de l'énergie cinétique associée au temps  $t_n$ , des ions de tungstène, en fonction de l'énergie laser. Ces deux courbes présentent des sauts en intensité à un flux de  $1,6 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$  pour le courant et  $4 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$  pour l'énergie cinétique associée au temps d'arrivée  $t_n$ .



**Figure (III-39) :** Courant des ions de tungstène en fonction du flux laser

On rappelle que le courant  $I$  est proportionnel au produit du nombre d'ions et du degré de charge:

$$I = \frac{dQ}{dt} = e \frac{d(ZN)}{dt} \quad (\text{III-2})$$

Où :

$e$  : la charge de l'électron.

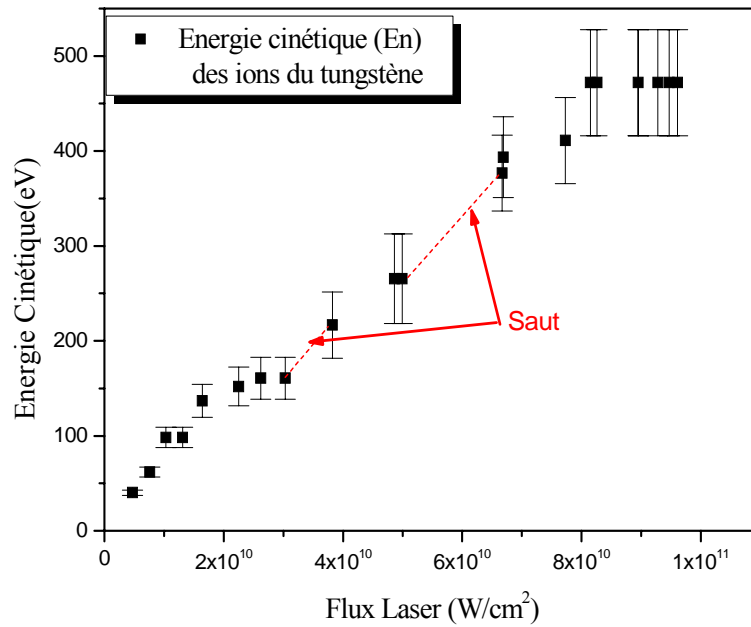
$Z$  : le degré de charge.

$N$  : le nombre d'ion.

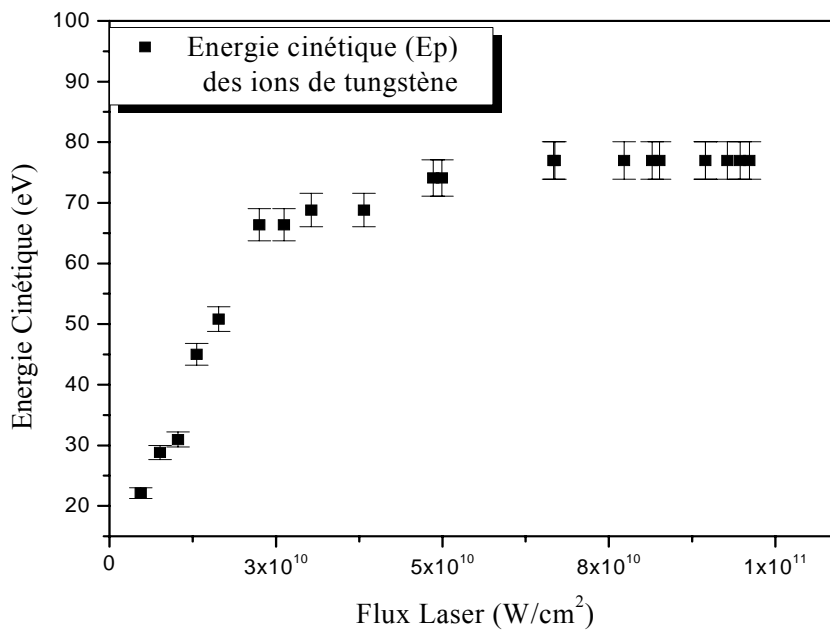
Lorsque le courant augmente, le produit, nombre d'ions par le degré de charge augmente.

A basse intensité laser, la masse ablatée est constituée en grande partie de vapeur, très peu ionisée. Avec l'augmentation du flux laser, l'absorption de l'énergie laser par cette dernière conduit à un claquage (optical breakdown) transformant la vapeur en plasma. Dans cette situation, l'énergie gagnée par les électrons du fait de l'absorption de l'énergie laser par rayonnement de freinage inverse ou par photo ionisation est supérieure à l'énergie perdue lors de collisions inélastiques avec les neutres et les ions du plasma. C'est cet effet qui produit une brusque augmentation du courant des ions (figure (III-39)).

Il est généralement admis que les ions du plasma sont accélérés par le champ ambipolaire créé par les électrons ayant une vitesse d'expansion plus grande que celle des ions, aussi, avec l'augmentation de l'énergie laser, tout changement dans l'état d'ionisation du plasma se manifestera par une augmentation brusque de l'énergie cinétique des ions les plus rapides (figure (III-40)). Ces effets apparaissent alors que la masse totale des particules éjectées se sature (figure (III-5)). La figure (III-41) montre l'évolution de l'énergie cinétique des ions, correspondant au pic, en fonction de l'énergie laser, une saturation est observée dans cette courbe. Des résultats similaires ont été obtenus par Amoruso et al, sur une cible d'aluminium et de cuivre [97-99]. Ces résultats étant attribués à l'opacité du plasma, dont le coefficient d'absorption augmente avec le degré de charge.

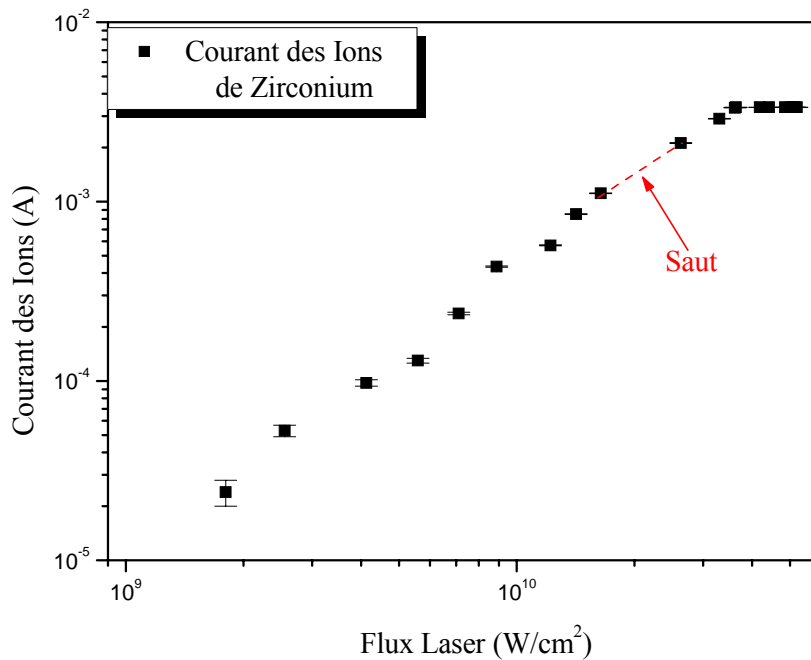


**Figure (III-40) :** Energie cinétique des ions du front avant du plasma en fonction du flux laser



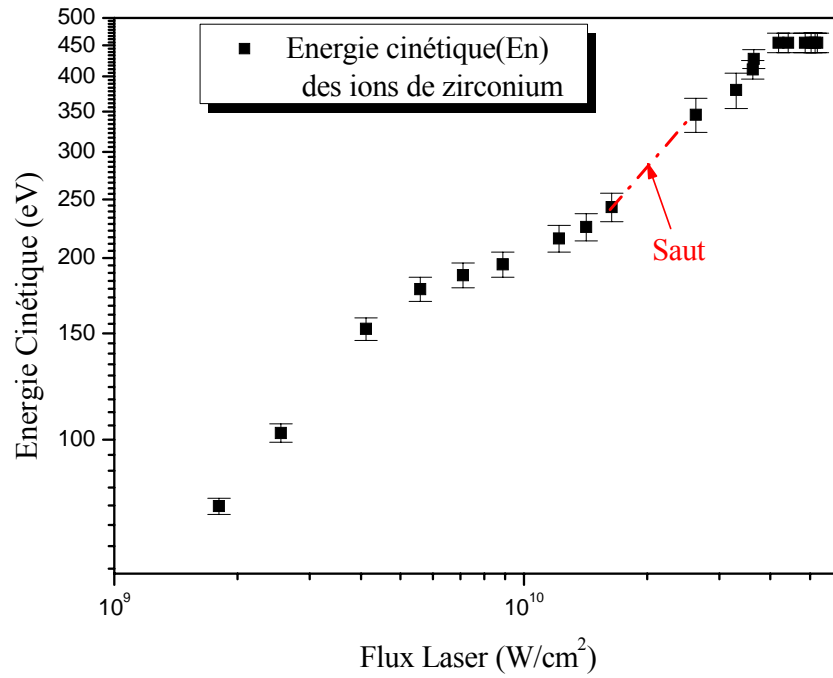
**Figure (III-41) :** Energie cinétique du maximum d'ions du plasma en fonction du flux laser

### • Cible de zirconium

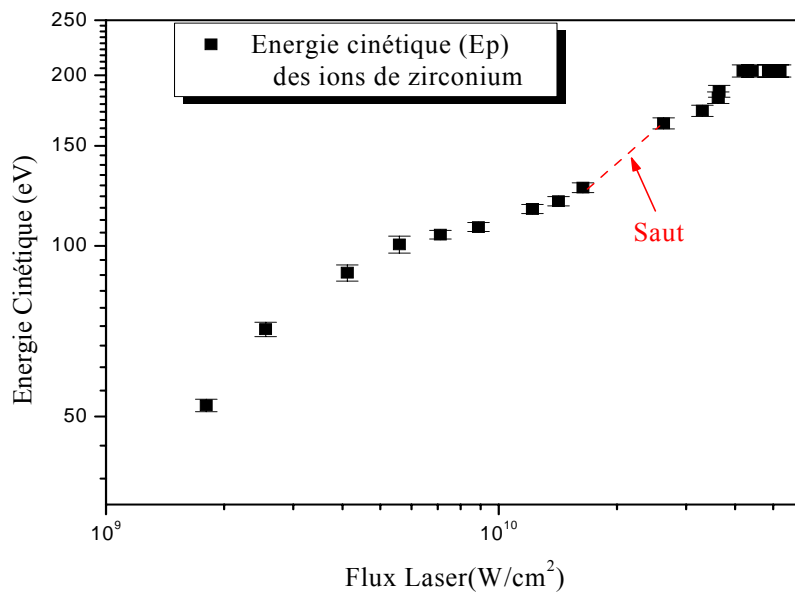


**Figure (III-42) :** Courant des ions de zirconium en fonction du flux laser

L'évolution du courant de sonde en fonction du flux laser pour la cible de zirconium est représentée en figure (III-42). De la même façon que pour la cible de tungstène, au-delà d'un certain flux laser, le courant se sature, mais l'augmentation se faisant de façon monotone. Par contre, les énergies correspondant au maximum de courant et aux ions les plus rapides montrent une évolution faisant apparaître des sauts, qui comme pour la cible de tungstène correspondent à une augmentation du nombre de charges et/ou à une ionisation supplémentaire. Ce qui suggère qu'à haute intensité laser la cible de zirconium a du faire une explosion de phase. Ces résultats sont bien corrélés avec l'imagerie MEB (présence de bulles).



**Figure (III-43) :** Energie cinétique des ions du front avant du plasma en fonction du flux laser



**Figure (III-44) :** Energie cinétique du maximum d'ions du plasma en fonction du flux laser

Ces différents résultats, montrent une bonne corrélation entre d'une part, les mesures effectuées au moyen de la balance, l'imagerie MEB et le collecteur d'ions pour toutes les cibles utilisées.

Pour la cible de tungstène c'est l'augmentation importante de la pression de vapeur, conduisant à une saturation du taux de masse ablatée, qui fait que la température de surface augmente et atteint une valeur critique provoquant l'explosion de phase. La saturation du nombre d'ions collectés, et l'augmentation de la masse éjectée, après le seuil d'explosion de phase, peut également constituer une indication que le surplus de matière éjectée à ces intensités, n'est pas constitué de particules chargées. Ces résultats sont en bon accord avec les travaux théoriques de Lu [66].

Pour la cible de zirconium, si les résultats donnés par la balance à quartz ne font pas apparaître le seuil d'explosion de phase, les résultats de l'imagerie et du collecteur de charges montrent une bonne corrélation. A haute intensité laser, l'apparition de bulles à la surface de l'impact est bien corrélée avec l'augmentation du signal d'ions collectés. De ces résultats, nous pouvons conclure que le chauffage en volume tel que vu par de nombreux auteurs est certainement responsable des ondulations de la surface de l'impact à faible intensité, mais qu'à haute intensité, la présence de bulles à la surface de l'impact et l'augmentation de l'amplitude du signal d'ions montrent que l'explosion de phase reste le mécanisme responsable de l'éjection de matière.

### **III-4 2. Estimation de la température de surface**

L'idée dans cette partie est d'estimer la température thermodynamique critique. On relie en premier entre les signaux de collecteur (TOF) et la température de surface de la cible. Ensuite au dessous du seuil d'explosion de phase la température de surface sera assignée à la température thermodynamique critique du matériau ablatée.

Pour les plasmas formés par ablation laser, la fonction de distribution de vitesse des espèces formant ce plasma est décrite par une fonction Maxwellienne déplacée (FDMD)(chapitre II relation (II-14)), donnée par [32, 91, 92] :

$$f_d \propto \exp\left(\frac{-2E_I + m(v_x^2 + v_y^2 + (v_z - u_k)^2)}{2k_B T}\right) \quad (\text{III-3})$$

*pour*  $-\infty < v_x, v_y, v_z < +\infty;$

En approximant les signaux obtenus par le collecteur par de telle fonction on essaye d'estimer la température de surface. Bien entendu, cette approximation ne sera valable que

dans le cas où la fluence laser reste inférieure au seuil de claquage optique dans la vapeur bien identifié par les signaux de collecteurs, autrement dit, dans le cas où l'énergie absorbée par la vapeur reste faible.

Zhigilei et Garisson [100] ainsi que Dang et al [101] ont montré qu'un signal obtenu par un collecteur de charges, lors de l'ablation laser enveloppe très souvent la contribution de plus d'une espèce d'origine différente. Zhigilei et Garrison [100] suggère que les espèces éjectées de la cible ont des vitesses de centre de masse différentes selon leur position initiale dans le plasma, les espèces de grande vitesse du centre de masse sont celle se trouvant sur le front du plasma ayant subi l'essentiel de l'absorption, alors que celles se trouvant proche de la cible verront leur vitesse du centre de masse réduite. Nodvorsky et al [102] ont analysés les signaux de collecteur de plasmas produits sur des cibles de cuivre et de tantale et ont montré l'existence d'une distribution multimodale. Dans les expériences d'ablation laser, la densité de neutres est maximum au voisinage de la surface d'ablation, et le processus d'évaporation continue sur des temps bien supérieur à la durée de l'impulsion laser. L'hypothèse faite par Nodvorsky et al [102] est qu'il y a un chevauchement entre la queue de la distribution des neutres les plus rapides et le front de la distribution des ions. Les collisions entre les espèces conduisent à une ionisation partielle des neutres par échange de charges résonnant, et une augmentation de leur vitesse.

Pour savoir combien d'espèces contribuent au signal ionique, il est nécessaire de déconvoluer ce signal. La déconvolution du signal fait apparaître le nombre de fonction de distributions contenu dans le signal et cela en démarrant de la relation (III-2) et on obtient la distribution en énergie :

$$\frac{dN}{dE} = \frac{t^3 \cdot V(t)}{m \cdot d^2 \cdot e \cdot R} = f(E) \quad (\text{III-4})$$

t : temps de vol (s).

V(t) : Amplitude du signal ionique (V).

R : résistance est de  $50\Omega$  .

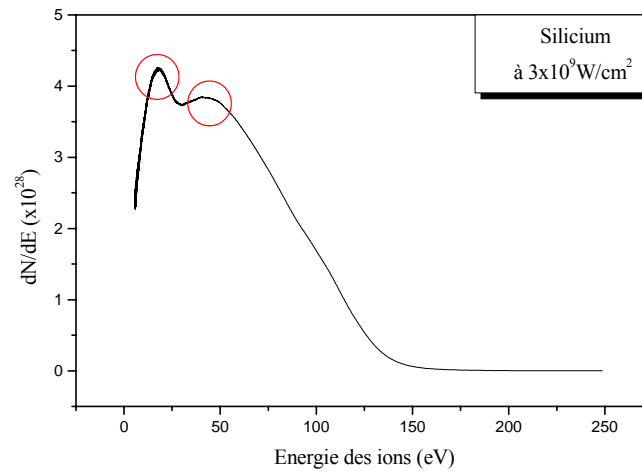
m :masse d'un atome (kg).

d : distance collecteur-cible (m).

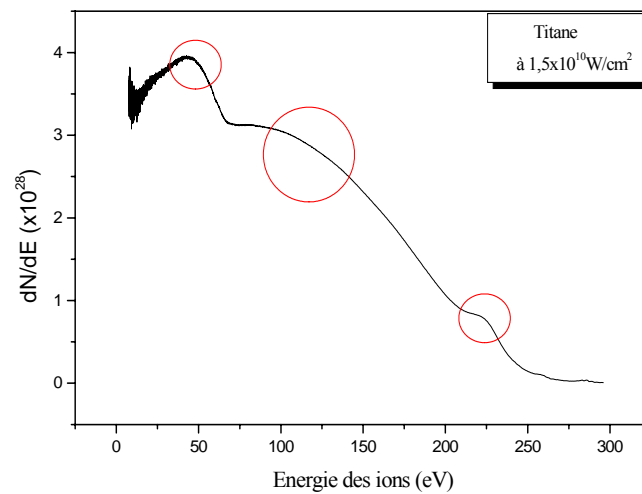
E : énergie cinétique (eV).

On représente sur les figures (III-45) et (III-46) les résultats obtenus dans le cas de la cible de silicium et de titane pour un flux laser donné. Ces figures montrent bien l'existence de structures multimodales auxquelles sont associées des températures différentes.

Pour connaître combien d'espèces contribue aux signal du pic ionique, la relation (III-4) est appliquées à tout les signaux récoltés pour toutes les cibles et tout les flux.



**Figure (III-45) :** Fonction de distribution en énergie des ions de silicium pour un flux laser de  $3 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$



**Figure (III-46) :** Fonction de distribution en énergie des ions de titane pour un flux laser de  $1,5 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$

Les résultats obtenus pour chaque cible sont représentés dans un tableau, les températures sont données en eV ( $1\text{eV}=11640\text{K}$ ). L'estimation de l'erreur pour chaque température a été donnée par le logiciel qui a permis l'approximation par des fonctions de Maxwell déplacées.

• **Cible de carbone**

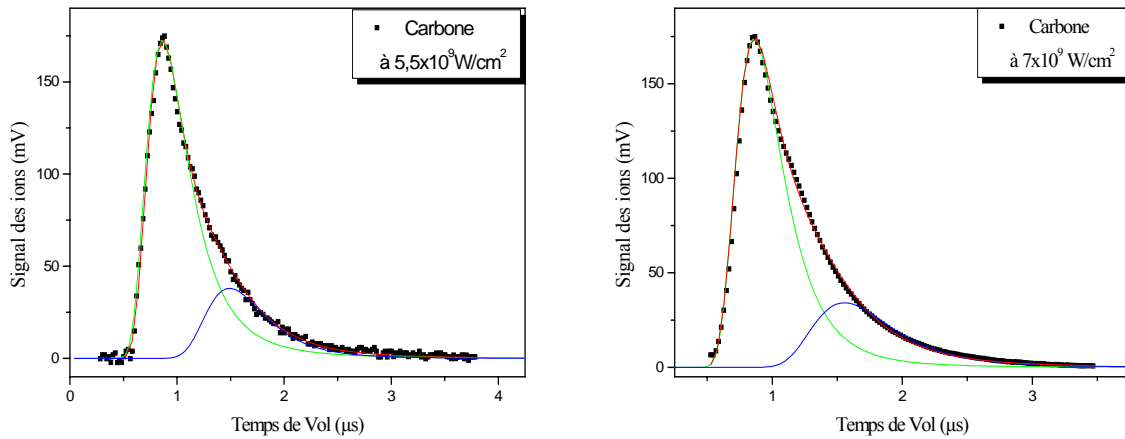


Figure (III-47) : Signal ionique approximé par deux FDMD

Flux laser (W/cm <sup>2</sup> )	$5,5 \times 10^9$	$7 \times 10^9$	$2,5 \times 10^{10}$
Température de Surface (ev)	$1,15 \pm 0,01$	$1,18 \pm 0,01$	$1,35 \pm 0,01$

Tableau (III-4) : Température de surface de la cible de carbone à différents flux laser

• **Cible de silicium**

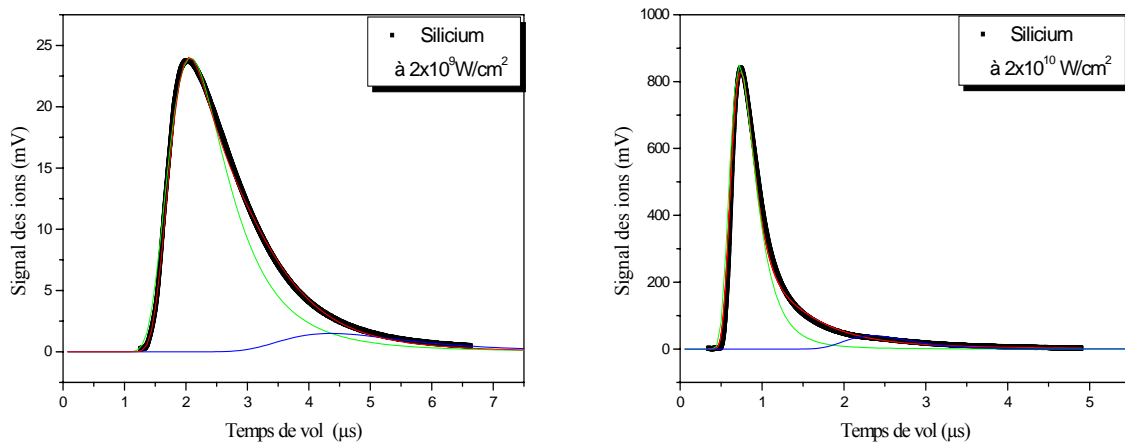


Figure (III-48) : Signal ionique approximé par deux FDMD

Flux laser (W/cm <sup>2</sup> )	$2 \times 10^9$	$3 \times 10^9$	$2 \times 10^{10}$
Température de Surface (ev)	$0,680 \pm 0,006$	$0,730 \pm 0,007$	$1,28 \pm 0,01$

Tableau (III-5) : Température de surface de la cible de silicium à différents flux laser

• **Cible de titane**

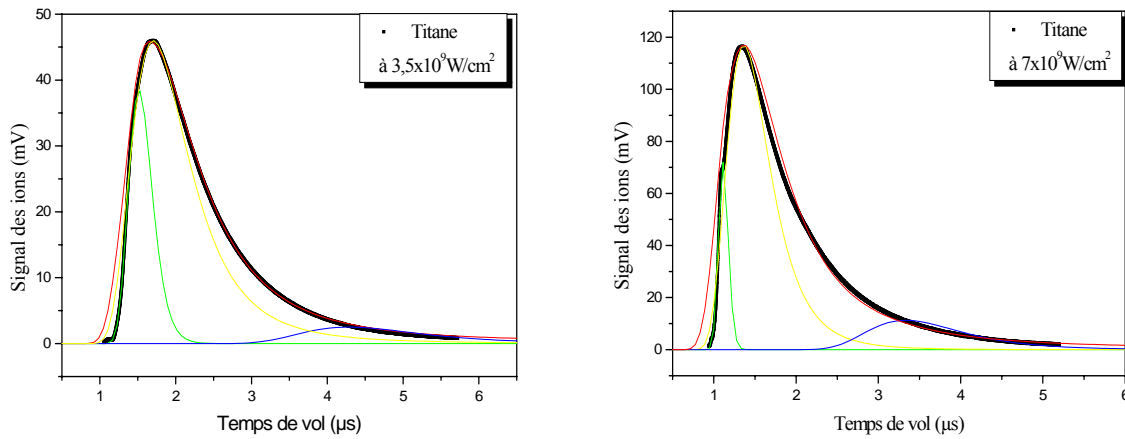


Figure (III-49) : Signal ionique approximé par trois FDMD

Flux laser (W/cm <sup>2</sup> )	$3,5 \times 10^9$	$5,5 \times 10^9$	$7 \times 10^9$
Température de Surface (ev)	$0,730 \pm 0,007$	$0,850 \pm 0,008$	$1,15 \pm 0,01$

Tableau (III-6) : Température de surface de la cible de titane à différents flux laser

• **Cible de tungstène**

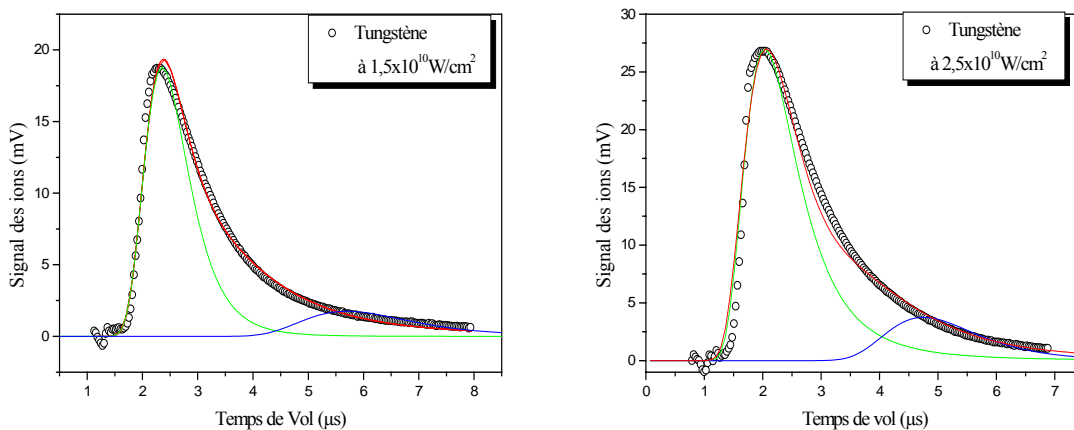
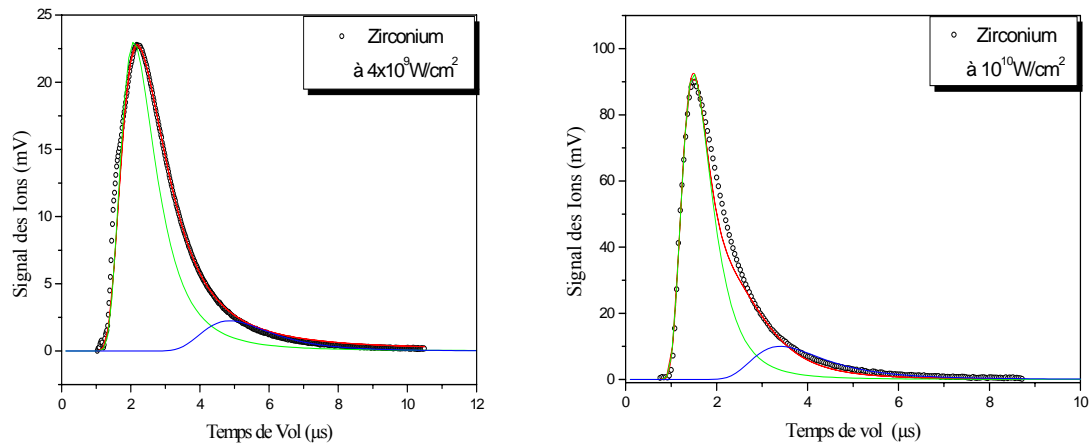


Figure (III-50) : Signal ionique approximé par deux FDMD

Flux laser (W/cm <sup>2</sup> )	$8 \times 10^9$	$1,5 \times 10^{10}$	$2,5 \times 10^{10}$	$4 \times 10^{10}$
Température de surface (eV)	$1,03 \pm 0,01$	$1,28 \pm 0,02$	$1,71 \pm 0,02$	$5,52 \pm 0,05$

Tableau (III-7) : Température de surface de la cible de tungstène à différents flux laser

### • Cible de zirconium



**Figure (III-51) :** Signal ionique approximé par deux FDMD

Flux laser (W/cm <sup>2</sup> )	$4 \times 10^9$	$10^{10}$	$2 \times 10^{10}$
Température de surface (eV)	$1,71 \pm 0,01$	$4,46 \pm 0,04$	$7,30 \pm 0,07$

**Tableau (III-8) :** Température de surface de la cible de carbone à différents flux laser

Bulgakov et al [15] donnent une température critique pour le carbone évalué par un modèle de calcul comme 1,92 eV. De plus en comparant les valeurs des températures critiques données pour les cibles de titane de silicium et de tungstène par Guldberg [72, 73] et Martynyuk [71] (chapitre I tableau (I-4)), nous estimons que l'utilisation des signaux de collecteur a donné des résultats assez satisfaisants.

En conclusion les mesures effectuées avec un collecteur de charge nous ont permis d'estimer la température de surface des cibles de carbone, de silicium, de titane, de tungstène et de zirconium. Pour les quatre premières cibles il est possible d'estimer la température de surface à la limite du seuil d'explosion de phase. Comme la cible de zirconium ne subit pas une explosion de phase mais un chauffage en volume, les températures estimées sont probablement du aux ions du plasma, les valeurs trouvées ne peuvent être la température critique du zirconium qui est au plus de 1,60 eV d'après Guldberg [72, 73].

### **III-5 Conclusion**

Les résultats obtenus par une balance à quartz suggèrent que pour un certain flux laser en plus de l'évaporation de la cible, un autre processus thermique est impliqué. Dans le cas des cibles de carbone, de silicium, de titane et de tungstène ce processus thermique est l'explosion de phase qui est responsable de l'éjection de gouttelettes suite à une nucléation de bulles homogène. Pour la cible de zirconium le processus thermique supplémentaire est le chauffage en volume. Pour valider les résultats obtenus avec la balance à quartz, des images ont été prises par un microscope électronique à balayage (MEB) à différents flux laser montrant une morphologie particulière des impacts. Si, pour les cibles de silicium, de titane et de tungstène à partir d'un certain flux laser la morphologie de l'impact change et présente des cavités indiquant une nucléation de bulles, pour la cible de zirconium, des ondulations de grande amplitude apparaissent à la surface de l'impact, même à basse intensité, ce qui est probablement dû au chauffage en volume. A haute intensité, nous retrouvons la même morphologie d'impact que les autres cibles. Ceci nous conduit à dire que la cible de zirconium est le siège d'un chauffage en volume à basse intensité laser (de l'ordre de  $10^9 \text{W/cm}^2$ ) mais à haute intensité laser, le mécanisme possible d'éjection de matière serait l'explosion de phase du fait de la présence de bulles à la surface de l'impact et de l'augmentation du signal d'ions.

Une estimation de la température de surface pour les cinq cibles a été faite en utilisant les signaux de collecteur. Pour les cibles ayant subi une explosion de phase et à la limite du flux laser seuil d'explosion de phase, l'estimation de la température de surface a été attribuée à la température critique du matériau ablater. La comparaison de nos résultats avec les différentes valeurs de la température critique tabulées ou calculées a donné des résultats satisfaisants.

# *Conclusion Générale*

## **Conclusion générale**

Le travail présenté dans ce mémoire porte sur l'identification du phénomène physique responsable de l'éjection d'agrégats (gouttelettes ou débris) lors de l'ablation par un laser Nd:Yag triplé en fréquence. Cette étude a permis de mettre en évidence l'influence des paramètres du laser à savoir le flux laser, et l'influence des propriétés physiques de la cible ablatée sur l'apparition de ces agrégats (gouttelettes ou débris). Cinq cibles ont été étudiées : le carbone, le silicium, le titane, le tungstène et le zirconium.

Trois outils de diagnostics et de mesures ont été utilisés : mesure de la quantité de matière éjectée de la cible par une balance à quartz, analyse des impacts fait par laser à l'aide d'un microscope électronique à balayage (MEB) et diagnostic du plasma produit par un collecteur de charge.

Les mesures faites par la balance à quartz placée face aux différentes cibles solides ablatées individuellement à différents flux laser ont montré des variations très surprenantes ; pour les cibles de carbone, de silicium de titane et de tungstène, la matière éjectée est passée par deux régimes d'ablation en augmentant le flux laser : un régime d'évaporation et un autre régime d'ablation différent du premier. Ce deuxième régime exhibe une réaugmentation de la quantité de matière éjectée de la cible à partir d'un certain flux laser. Pour la cible de zirconium la quantité de matière éjectée augmente linéairement avec le flux laser, aucun changement de régime d'ablation n'est observé. En énumérant les différents processus thermiques impliqués lors de l'ablation laser, les résultats obtenus par la balance à quartz ont été expliqués comme suit :

Pour les quatre cibles utilisés et à partir d'un certain flux laser, un autre processus thermique est responsable de l'éjection de matière. Ce processus thermique est l'explosion de phase qui est responsable de l'éjection de gouttelettes. Par contre pour la cible de zirconium le processus thermique produit ne peut être que le chauffage en volume, qui est dû à la faible absorption de l'énergie laser dans le spectre U.V par le zirconium.

L'imagerie des impacts par le microscope optique à balayage a été faite pour expliquer et appuyer les résultats obtenus avec la balance à quartz. Cette analyse a été réalisée sur des impacts par laser à différents flux laser et à différent nombre de tirs laser sur les différentes cibles à l'exception de la cible de carbone.

Les images obtenues ont montré une morphologie des impacts particulière pour les cibles de silicium, de titane et de tungstène à partir d'un certain flux laser. L'impact fait par laser a montré une morphologie pour un flux de  $10^9 \text{W/cm}^2$  différente de la morphologie de l'impact à un flux de l'ordre de  $10^{10} \text{W/cm}^2$  pour les quatre cibles citées ci-dessus. La surface de l'impact a présenté des cavités et des pores indiquant une nucléation de bulles. De la même façon que pour les résultats obtenus avec la balance à quartz l'explosion de phase a été identifiée comme étant le mécanisme physique responsable de l'éjection de gouttelettes pour les quatre cibles. Ces gouttelettes éjectées de la cible en fusion sont dues à la nucléation de bulles de vapeur homogènes du fait que la température de la cible a atteint la température critique où les deux phases, liquide et gazeuse, coexistent.

Pour la cible de zirconium un comportement différent par rapport aux autres cibles est observé. La quantité de matière éjectée mesurée au moyen de la balance à quartz, augmentant de façon uniforme avec l'intensité laser, ne fait pas apparaître de particularités. La microscopie électronique montre que la surface de l'impact présente des ondulations importantes même à faible intensité laser. À haute intensité laser, l'apparition de bulles à la surface de l'impact est bien corrélée avec l'augmentation du signal d'ions collectés. De ces résultats, nous pouvons conclure que le chauffage en volume tel que vu par de nombreux auteurs est certainement responsable des ondulations de la surface de l'impact à faible intensité. Mais à haute intensité, la présence de bulles à la surface de l'impact et l'augmentation de l'amplitude du signal d'ions montrent que l'explosion de phase reste le mécanisme responsable de l'éjection de matière.

L'analyse des impacts par MEB a aussi montré pour les quatre cibles étudiées, que le nombre de tirs laser n'a eu aucune influence sur la morphologie de l'impact.

Des mesures de quelques profondeurs faites sur les quatre cibles citées ci-dessus ont été faites par un microscope optique à réflexion. Ces mesures de profondeur ont montré que la quantité totale de matière éjectée de la cible en changeant le flux laser se comporte de la même façon que la quantité de matière éjectée de la cible vue par la balance à quartz (une partie de la quantité totale de la matière éjectée).

Enfin, la troisième partie de ce travail consiste à utiliser le collecteur de charge. Cette étude nous a permis l'analyse des courants d'ions dans le panache du plasma ainsi que de leur

énergie cinétique. Les résultats obtenus ont montré un claquage optique dans la vapeur ainsi qu'une augmentation de la densité électronique qui a conduit à une plus grande absorption du rayonnement laser, induisant une augmentation de la pression de vapeur. D'autre part, étant donné l'apparition d'une distribution multimodale des signaux ioniques obtenus par le collecteur cela a permis de déduire la température de surface suivant certaines hypothèses pour les cinq cibles ablatés au flux laser considéré. Au seuil de l'explosion de phase, la température de surface a été assignée à la température critique du matériau ablaté. Les températures déduites sont comparables à celles publiées par d'autres auteurs.

Ainsi, il est apparu dans ce travail, que le mécanisme d'explosion de phase, conduit d'une part à une augmentation brusque de la quantité de masse éjectée, à une surface d'impact caractérisée par des cavités et des pores, signatures de l'ébullition, et à une augmentation de la quantité d'ions dans le plasma en expansion. La détermination de l'intensité seuil est certainement plus précise par l'utilisation du collecteur d'ions.

A travers cette étude où le mécanisme d'explosion de phase a été mis en évidence, il apparaît d'autres aspects ; le flux laser seuil d'explosion de phase, déterminé par les mesures de la matière éjectée au moyen de la balance à quartz peut être injecté dans l'équation de chaleur pour déterminer le profil de la température de surface de la cible ablatée. A ce flux, la température de surface devrait approcher la température thermodynamique critique du matériau ablaté. La température critique sera déterminée de manière plus précise qu'en analysant les signaux de collecteur. Une bonne compréhension du mécanisme d'explosion de phase pourrait conduire à une maîtrise et peut être un contrôle de la taille des gouttelettes, ce qui constitue un excellent défi. Une optimisation au préalable est nécessaire pour contrôler la taille des gouttelettes en fonction des paramètres du laser (énergie, durée d'impulsion).

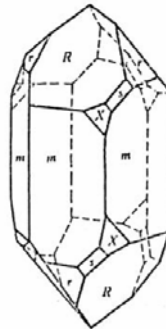
*Annexe*

*Quartz et microbalance*

## Annexe

### A-1 Les propriétés physiques du quartz

Un quartz est un cristal transparent de dioxyde de silicium ( $\text{SiO}_2$ ). Il possède la forme naturelle d'un prisme hexagonal aux extrémités pyramidales. La figure (A-1) présente un monocristal de quartz qui montre sa symétrie hexagonale. Au-dessous de  $537^\circ\text{C}$ , le quartz possède des propriétés diélectriques, élastiques et piézo-électriques qui déterminent sa fréquence de résonance [103].



**Figure (A-1) : Un cristal de quartz**

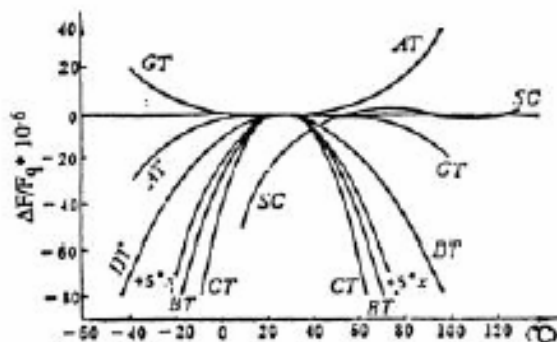
#### A-1 1. Les modes de vibration du quartz

Le quartz entre en résonance lorsque la fréquence d'excitation extérieure est voisine de sa fréquence propre. La fréquence propre de résonance du quartz dépend de sa forme, des constantes élastiques et de sa densité. Dans un matériau piézo-électrique comme le quartz, plusieurs modes de vibrations sont possibles (mode de compression, mode de flexion, mode de cisaillement....) [103].

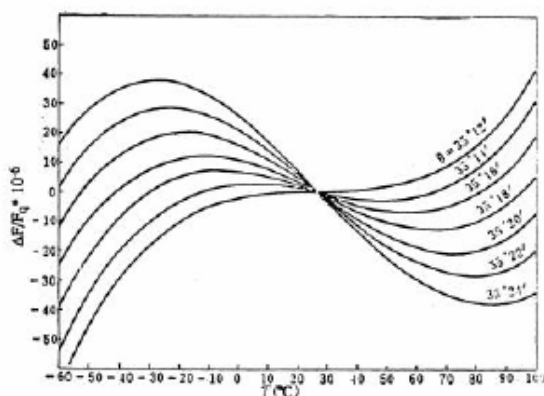
Les résonateurs à quartz utilisés habituellement pour la mesure du taux de dépôt présentent une fréquence de quartz de quelques mégahertz. Le quartz aura des coupes AT, BT et SC qui vibrent toutes suivant un mode de cisaillement [103].

#### A-1 2. Evolution des propriétés physiques du quartz avec la température

Les propriétés élastiques et piézo-électriques du quartz évoluent avec la température. Au dessous de  $537^\circ\text{C}$ , un quartz manifeste des propriétés piézo-électriques, mais tout dépend de sa coupe. La figure (A-2) illustre les variations de la fréquence de résonance avec la température et le choix de la coupe. On voit sur la figure (A-2) que parmi toutes les coupes qui existent, seule la coupe AT possède une fréquence de résonance qui dépend très peu de la température autour de la température ambiante. En fait, comme le montre la figure (A-3), cette propriété dépend de manière très critique de la direction exacte de la coupe.



**Figure (A-2) Variations de la fréquence avec la température et le choix de la coupe [103]**



**Figure (A-3) Variation de l'écart relatif de fréquence (en ppm) en fonction la température (en °C), pour différents angles de la coupe AT [103]**

Supposons que notre quartz ait une fréquence de résonance  $F_q$  de 4 MHz pour une coupe AT avec un angle de  $35^{\circ}14'$  (figure (A-3)). Lorsque la température varie de 25 à  $70^{\circ}\text{C}$ , on observera une variation de sa fréquence de résonance de 40 Hertz, associée aux évolutions des propriétés physiques du quartz avec la température. Cette dérive thermique de la balance à quartz deviendra l'une des causes principales d'erreur dans la mesure [103].

### **A-1 3. Mesure du taux de dépôt**

Il existe plusieurs modes opératoires pour mesurer le taux de dépôt en utilisant un oscillateur à quartz dans un dispositif de dépôt sous vide [103] : le premier utilise une technique de mesure de la fréquence, le deuxième une mesure de la période et finalement le troisième utilise un modèle d'adaptation d'impédance acoustique ("Z-match").

Ces trois types de dispositif sont basés sur le principe de la variation de la fréquence de résonance  $df$  du quartz avec la masse déposée  $dM$  sur la surface du quartz. Cette variation peut s'écrire :

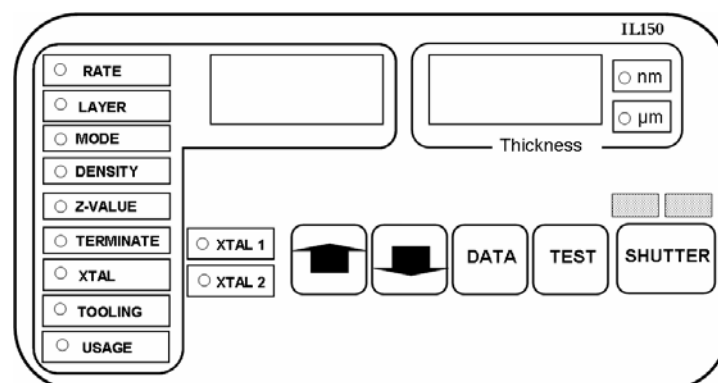
$$df = -K dM \quad (\text{A-1})$$

Où  $K$  est une constante,  $df$  est la variation de fréquence provoquée par la masse déposée sur la surface du quartz,  $dM$  est la masse déposée. Le signe moins signifie que la fréquence du quartz diminue lorsque la masse déposée sur la surface du quartz augmente.

La balance utilisée dans nos mesures fonctionne sur le principe d'adaptation d'impédance.

## A-2 Mode d'utilisation de la IL150

On dispose sur la console IL150 de boutons permettant de faire entrer des données relatives à l'élément qu'on désire déposer sur le quartz. Pour modifier les données, on met le "LED" sur le paramètre qu'on désire changer en appuyant sur le bouton "DATA", et en maintenant l'appuie sur "DATA" on passe sur tout les paramètres de la console "figure(A-4)".



**Figure (A-4) : Face avant de la console IL150 [86]**

Quand le "LED" est sur un des paramètres, on a 10 secondes pour changer la valeur du paramètre choisi avant que la IL150 ne revienne automatiquement à la première donnée affichée "Rate". La valeur du paramètre peut être modifier en appuyant sur les touches "INC" ou "DEC".

Les paramètres qui sont disponibles sur la console IL150 sont :

**Layer** : ce paramètre varie de 0 à 8, il identifie la couche en cours de dépôt, et pour laquelle les données sont utilisées pour calculer l'épaisseur affichée sur la console. La "**layer**" 0 ou couche 0 n'est associé à aucun dépôt mais est utilisé pour fixer le paramètre "**Mode**" choisi.

**Mode** : il permet de changer la manière dont la IL150 sélectionne le paramètre de sortie, on peut y accéder en mettant "**Layer**" à 0. Le mode 0 par exemple a comme paramètre de sortie le taux de dépôt, alors que le mode 2 donne l'épaisseur comme paramètre de sortie.

**Density** : ce paramètre indique la densité de l'élément choisit à être évaporer et est donnée en  $\text{g/cm}^3$ . La valeur par défaut est 1.

**Z-value** : ce paramètre indique l'impédance acoustique du matériau qui va être déposé, elle est donnée en  $10^5 \text{ cm}^2 \text{ g}^{-1} \text{ s}^{-1}$ . La valeur par défaut est 8.834.

On rappelle que l'impédance acoustique caractérise la résistance qu'un milieu oppose à sa mise en mouvement lorsqu'il est traversé par une onde acoustique. Elle est définie comme le rapport de la pression acoustique sur la vitesse de déplacement local dans un milieu.

**Terminate** : ce paramètre indique la valeur de l'épaisseur du film déposé finale. La balance est alors dotée d'un "shutter" pour les dépôts contrôlés.

**Tooling** : ce paramètre est un facteur géométrique de compensation. Si le cristal est plus loin de la cible que le substrat alors il recevra une couche plus fine que le substrat. Ce facteur peut être déterminé par une calibration expérimentale. Il peut être établi pour chaque couche et peut prendre une valeur entre 0.001 et 999.9. Un **Tooling** facteur de 1.00 implique que le cristal et le substrat reçoivent la même épaisseur déposée. Alors qu'un **Tooling** facteur plus grand implique que le cristal reçoit une couche plus fine que le substrat, et inversement un petit **Tooling** implique que le cristal est plus chargé que le substrat. La valeur par défaut est 1.0.

**Xtal** : ce paramètre peut prendre la valeur 1 ou 2, suivant le cristal utilisé pour contrôler l'épaisseur du dépôt. En mode secours la valeur de ce paramètre est incorrect.

**Usage** : ce paramètre ne peut être modifié, il représente la charge sur le cristal en affichant la fréquence du cristal chargée ajoutée à sa fréquence de vibration 6MHz, elle est donnée en KHz.

**Test** : cette touche permet de tester le bon fonctionnement de la console, en appuyant sur la touche "**Test**" le LED s'allume indiquant que le mode test est activé, tout les LEDs des autres touches s'allumeront cela signifie qu'ils fonctionnent bien. Après trois secondes, la valeur de la fréquence du cristal actuel s'affichera. Lorsque la fréquence affichée aura la valeur de 5MHz le cristal est défectueux et doit être remplacé. Pour quitter ce mode on appuie de nouveau sur la touche "**Test**".

# *Bibliographie*

**Bibliographie**

- [1] "Handbook of Deposition Technologies for Films and Coatings", 2<sup>nd</sup> edition, Editor R.F.Bunshah, (Noyes) (1994).
- [2] F.Dahmani, T.Kerdja, *Physical Review A*, **44** (4), p. 2649 (1991).
- [3] S.Abdelli-Messaci, A.H.Khalifaoui, T.Kerdja, D.Ghobrini, *Laser and Particles Beams*, **10**, p. 629 (1992).
- [4] T. Kerdja, S.Abdelli, D.Ghobrini, S. Malek, *Journal of Applied Physics*, **80**, p. 5365 (1996).
- [5] T.Kerdja, S.Abdelli-Messaci,E.Amara, D.Ghobrini, M.Si-Bachir, S.Malek, *Laser and Particle Beams*, **16** (1), p. 31 (1998).
- [6] S.Abdelli-Messaci, T.Kerdja, A.Bendib, S.Malek, *Journal of Physics D: Applied Physics*, **35** (21), p. 2772 (2002).
- [7] S. Abdelli-Messaci, T.Kerdja, A.Bendib, S.M. Aberkane, S.Lafane and S.Malek, *Applied Surface Science*, **252** (5), p. 2012 (2005).
- [8] S.Abdelli-Messaci, T.Kerdja, A.Bendib and S.Malek, *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, **60** (7-8), p. 955 (2005).
- [9] A.Miotello, R.Kelly, *Applied physics Letters*, **67** (24), p. 3553 (1995).
- [10] R.Kelly, A.Miotello, *Applied Surface Science*, **96-98**, p. 205 (1996).
- [11] R.Kelly, A.Miotello, *Physical Review E*, **60**, p. 2616 (1999).
- [12] A.Miotello, R.Kelly, *Applied Physics A*, **69**, p. S67 (1999).
- [13] J-C.Orlianges, Thèse de Doctorat, Université de Limoges (France) (2003).
- [14] H.M.Smith, A.F.Turner, *Applied Optics*, **4**, p. 147 (1965).
- [15] N.M.Bulgakova, A.V.Bulgakov, *Applied Physics A*, **73**, p. 199 (2001).
- [16] Z.Zhang, G.Gogos, *Applied Surface Science*, **252**, p. 1057 (2005).
- [17] HANDBOOK OF CHEMISTRY AND PHYSICS, CRC PRESS, 84 th EDITION (2003-2004).
- [18] D.Bäuerle, *Laser Processing and Chemistry*, Third Edition, Springer (2000).
- [19] C.Vivien, Thèse de Doctorat, Université d'Orléans, France (1998).
- [20] R.S.Franklin, R.K.Thareja, *Applied Surface Science*, **222**, p. 293 (2004).
- [21] J.F.Ready, *Effects of High-Power Laser Radiations*, Academic Press, New York (1971).
- [22] A.L.Thomann, Thèse de Doctorat, Université d'Orléans, France (1995).
- [23] E.Sicard, Thèse de Doctorat, Université d'Orléans, France (1998).
- [24] R.K. Singh, J. Narayan, *Physical Review B*, **41**, p. 8843 (1990).

- [25] J.N.Leboeuf, K.R.Chen, J.M.Donato, D.BGeohegan, C.L.Liu, A.A.Puretzky, R.F.Wood, *Applied Surface Science*, **96-98**, p. 14 (1996).
- [26] A.Lenk, B.Shrultrich, T.Witke, *Applied Surface Science*, **106**, p. 473 (1996).
- [27] P.G.Strupp, P.C.Stair, E.Weitz, *Journal of Applied Physics*, **69** (6), p. 3472 (1991).
- [28] V.Nassini, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, **340**, p. 182 (1994).
- [29] A.Lenk, B.Schultrich, T.Witke, H.-J.Weib, *Applied Surface Science*, **109/110**, p. 419 (1997).
- [30] J.Hermann, Thèse de Doctorat, Université d'Orléans (France) (1991).
- [31] L.Vivet, Thèse de Doctorat, Université d'Orléans, France (1996).
- [32] R.Kelly, R.W.Dreyfus, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **32**, p. 341 (1988).
- [33] J.C.S.Kools, E.van de Riet, J.Dielman, *Applied Surface Science*, **69** p. 133 (1993).
- [34] R.Kelly, R.W.Dreyfus, *Surface Science*, **198** (1-2), p. 263 (1988).
- [35] C.J.Knight, *AIAA Journal*, **17** (5), p. 519 (1979).
- [36] S.Amoruso, *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, **69**, p. 323 (1999).
- [37] D.I.Rosen, J.Miteldorf, G.Kothandaraman, A.N.Pirri, E.R.Pugh, *Journal of Applied Physics*, **53** (4), p. 3190 (1982).
- [38] S.Amoruso, R.Bruzzese, N.Spinelli, R.Velotta, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, **32**, p. R131 (1999).
- [39] A.A Radzig, B.M Smirnov, *Reference Data On Atoms, Molecules and Ions*, Edition Springer-Verlag (1985).
- [40] H.Sassoli, thèse de Doctorat, Université de la Méditerranée Aix-Marseille II, Faculté des Sciences de Luminy (France) (1998).
- [41] O.Yavas, P.Leiderer, H.K. Park, C.P. Grigoropoulos, C.C. Poon, W.P. Leung, N. Do, A.C. Tam, *Physical Review Letters*, **70** (12), p. 1830 (1993).
- [42] W.Fucke, U.Seydel, *High temperature – High pressure*, **12**, p. 419 (1980).
- [43] R.Kelly, A.Miotello, *Journal of Applied Physics*, **87** (6), p. 3177 (2000).
- [44] F.W.Dabby, U.C.Paek, *IEEE, Quantum Optic QE-8*, p. 106 (1972).
- [45] F.P.Galiano, U.C.Paek, *Applied Optics*, **13**, p. 274 (1974).
- [46] D.Bhattacharya, R.K.Singh, P.H.Holloway, *Journal of Applied Physics*, **70**, (11), p. 5433 (1991).
- [47] R.K Singh, D.Bhattacharya, J.Narayan, *Applied Physical letters*, **57** (19), p. 2022 (1990).
- [48] M.M.Martynyuk, *Soviet Physics Technical Physics*, **19**, p. 793 (1976).
- [49] M.M.Martynyuk, *Soviet Physics Technical Physics*, **21**, p. 430 (1976).

- [50] W.Fucke, U.Seydel, *Journal of Physics F* **8**, p. 157 (1978).
- [51] R.Kelly, A.Miotello, A.Mele, A.G.Guidoni, J.W.Hastie, P.K.Schenk, H.Okabe, *Applied Surface Science* **133**, p. 251 (1998).
- [52] V.Craciun, D.Craciun, *Applied Surface Science*, **138-139**, p. 218 (1999).
- [53] B.Angleraud, F.Garrelie, F.Tétard, A.Catherinot, *Applied Surface Science*, **138-139**, p. 507 (1999).
- [54] J.H.Yoo, S.H.Jeong, X.L.Mao, R.Greif, R.E.Russo, *Journal of Applied Physics*, **88** (3), p. 1638 (2000).
- [55] J.H.Yoo, S.H.Jeong, X.L.Mao, R.Greif, R.E.Russo, *Applied Physics Letters*, **76** (6), p. 783 (2000).
- [56] X.Xu, K.H.Song, *Materials Science and Engineering*, **A292**, p. 162 (2000).
- [57] R.F.Halglund Jr, D.R.Ermer, *Applied Surface Science*, **168**, p. 258 (2000).
- [58] J.H.Yoo, O.V.Borisov, X.Mao, R.E.Russo, *Analytical Chemistry*, **73** (10), p. 2288 (2001).
- [59] V.Craciun, N.Bassin, R.K.Singh, D.Craciun, J.Hermann, C.Boulmer-Leborgne, *Applied Surface Science*, **186**, p. 288 (2002).
- [60] Q.Lu, S.S.Mao, X.Mao, R.E.Russo, *Applied Physics Letters*, **80** (17), p. 3072 (2002).
- [61] N.M.Bulgakova, A.V.Bulgakov, I.M.Bourakov, N.A.Bulgakova, *Applied Surface Science*, **197-198**, p. 96 (2002).
- [62] N.M.Bulgakova, I.M.Bourakov, *Applied Surface Science*, **197-198**, p. 41 (2002).
- [63] X.Xu, *Applied Surface Science*, **197-198**, p61 (2002).
- [64] H.Dömer, O.Bostanjoglo, *Applied Surface Science*, **208-209**, p. 442 (2003).
- [65] B.J.Garrison, T.E.Itina, L.V.Zhigilei, *Physicals Review E*, **68**, p. 0411501 (2003).
- [66] Q.Lu, *Physicals Review E*, **76**, p. 016410 (2003).
- [67] S.N.Andreev, A.A.Samokhin, I.Smurov, *Applied Surface Science*, **252** (13), p. 4506 (2006).
- [68] D.M. Karnakis, *Applied Surface Science*, **252** (22), p. 7823 (2006).
- [69] C.Porneala, D.A.Willis, *Applied Physics Letters*, **89**, p. 211121, (2006).
- [70] J.J.Yoh, H.Lee, J.Choi, K.cheol.Lee, K-H.Kim, *Journal Of Applied Physics*, **103**, p. 043511 (2008).
- [71] M.M.Martynyuk, *Russian Journal of Physical Chemistry*, **57**, p. 494 (1983).
- [72] C.M.Guldberg, *Z.Physics and Chemistry*, **5**, p. 374 (1890).
- [73] I.B.Sladkov, *Russian Journal of Physical Chemistry*, **58**, p. 1250 (1984)
- [74] I.B.Sladkov, N.A.Semenov, *Russian Journal of Applied Chemistry*, **80** (1), p. 155 (2007).
- [75] <http://www.webelements.com>.

- [76] O.Kubaschewski, C.B.Alcock, Metalurgical thermochemistry, Pergamon, London 5<sup>th</sup> Edition (1979).
- [77] A.Mele, A.GiardiniGuidoni, R.Kelly, C.Flamini, S.Orlando, Applied Surface Science, **109/110**, p. 584 (1997).
- [78] H.Dupendant., J.P .Gavigan, Applied Surface Science, **43**, p. 369 (1989).
- [79] N. Cherief, D. Givord, A. Liénard, K. Mackay, O.F.K. McGrath, J.P. Rebouillat, F.Robaut, Y. Souche, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, **121** (1-3), p. 94 (1993).
- [80] K.Kuba, T.Sugihara, Applied Surface Science, **96-98**, p. 659 (1996).
- [81] K.Kuba, T.Sugihara, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, **121**, p. 392 (1997).
- [82] A.A.Gorbunov, W. Pompe, A.Sewing, S.V.Gaponov , A.D.Akhsakhalyan, I.G.Zabrodin, I.A.Kas'kov, E.B.Klyenkov, A.P.Morozov , N.N.Salaschenko, R.Dietsch , H.Mai, A.P.Völlmar, Applied Surface Science, **96-98**, p. 649 (1996).
- [83] R. Jordan, D. Cole, J. G. Lunney, Applied Surface Science, **109-110**, p. 403 (1997).
- [84] W.Koechner, Solid-State Laser Engineering 5th Edition Springer-Verlag (1999).
- [85] Catalogue d'instruction QUANTEL YG 980 series.
- [86] Technical Manual Intellemetrics, Model IL150 THICKNESS MONITOR.
- [87] G.Z Sauerbrey, Z.Physics, **155**, p. 206 (1959).
- [88] S.N. Srivastava, K.Rohr, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, **237**, p. 497 (2005).
- [89] L.Cultrera, M.I.Zeifman, A.Perrone, Applied Surface Science, **253**, p. 6322 (2007).
- [90] K.H.Belhou, Collecteur de charge dans l'étude d'un plasma produit par laser, Note et Documents, CDTA (1985).
- [91] F.Claeyssens, Thèse de PhD, Université de Bristol (Grande Bretagne) (2001).
- [92] N.M.Bulgakova, A.V.Bulgakov, Physical Review E, **62** (4) p. 5624 (2000).
- [93] S.Liebus, Thèse de Doctorat, Université de Limoges, France (2003).
- [94] Catalogue d'instructions du Microscope Electronique à Balayage JEOL.
- [95] Catalogue du profilomètre Alpha-Step 250 Tencor Instruments.
- [96] T.Kerdja, K.Yahiaoui, A.Bendib, S.Malek, Materials Science Forum, **609**, p. 37 (2009).
- [97] S.Amoruso, Applied Surface Science, **138-139**, p. 292 (1999)
- [98] S.Amoruso, M.Armente,V.Beradi,R.Bruzzese, N.Spinelli, Applied Physics A, **65**, p. 265 (1997).

- [99] S.Amoruso M.Armente, V.Beradi,R.Bruzzese, R.Velotta,X.Wang, Applied Surface Science, **127-128**, p. 1017 (1998).
- [100] L.V.Zhigilei, B.J.Garrison, Applied Physics Letters, **71** (4), p. 551 (1997)
- [101] H-J.Dang and Q-Z.Qin, Applied Surface Science, **151**, p. 180 (1998).
- [102] O.A.Nodvorsky, O.D.Khramova, C.Wenzel, J.W.Bartha, E.O.Filippova, Journal of Applied Physics, **95** (5), p. 3612, (2003).
- [103] Y-M.JIANG, thèse de Doctorat Université Paris XI Orsay (France), (1992).