THÈSE

PRÉSENTÉE À

L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX

ÉCOLE DOCTORALE SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

par **Paul QUINOMAN**

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPÉCIALITÉ : LASER, MATIÈRE, NANOSCIENCES

Structuration de matériaux diélectriques par un train d'impulsions laser femtoseconde avec dérive spatiale en fréquence

---

Date de soutenance : 18 janvier 2023

Sous la direction de :

Hervé JOUIN	Professeur, Université de Bordeaux, CELIA	Directeur de thèse
Guillaume DUCHATEAU	Ingénieur-Chercheur CEA, CEA CESTA ..	Co-directeur
Benoît CHIMIER	Chargé de Recherche, CNRS, CELIA	Co-encadrant

Devant la commission d'examen composée de :

Arnaud COUAIRON	Directeur de Recherche, CNRS, CPhT	Rapporteur
David GROJO	Directeur de Recherche, CNRS, Aix-Marseille Univ., LP3 .	Rapporteur
Stéphane GUIZARD	Directeur de Recherche, CEA, Univ. Paris-Saclay, IRAMIS	Président du jury
Jean-Philippe COLOMBIER	Professeur, Univ. Jean Monnet, Laboratoire Hubert Curien	Examinateur
Hervé JOUIN	Professeur, Université de Bordeaux, CELIA	Directeur de thèse
Guillaume DUCHATEAU ...	Ingénieur-Chercheur CEA, CEA CESTA	Co-directeur
Benoît CHIMIER	Chargé de Recherche, CNRS, CELIA	Invité

– 2022 –

Résumé Les lasers femtosecondes sont aujourd'hui largement utilisés afin d'induire des modifications structurelles dans le volume des matériaux, en particulier dans les matériaux diélectriques. En raison de leur large bande interdite, ces matériaux sont transparents à la lumière visible, et ne deviennent absorbants que pour des flux importants. La non-linéarité de l'interaction entraîne ainsi l'existence d'un seuil en intensité pour ioniser sensiblement le matériau, permettant d'obtenir des dépôts d'énergie localisés au sein de son volume. Cependant, le contrôle de la position et de la géométrie de ce dépôt peut se révéler complexe, nécessitant d'ajuster finement les différents paramètres laser. Si l'influence de l'énergie laser, l'ouverture numérique du faisceau et la durée de l'impulsion ont été largement étudiées, la mise en forme de la distribution spatiale et temporelle de l'énergie laser constitue une approche prometteuse et moins documentée. Ce travail vise à étudier l'influence de la mise en forme de trains d'impulsions laser, dans des conditions de focalisation et d'intensité laser modérées (conditions paraxiales), pour des impulsions présentant une dérive spatiale en fréquence. Dans un premier temps, l'utilisation d'impulsions présentant une dérive spatiale en fréquence dans le plan transverse à la propagation est étudiée à l'aide du code ARCTIC, résolvant les équations de Maxwell en 3D. Des conditions laser pertinentes ont été identifiées et implémentées dans le code ARCTIC. Les simulations réalisées pour de telles impulsions démontrent la possibilité de contrôler la direction du front d'ionisation et ainsi la géométrie du dépôt d'énergie. Un modèle simple prédisant la géométrie du dépôt d'énergie est également présenté. Dans un second temps, afin d'étudier l'interaction de multiples impulsions avec le matériau, un modèle de propagation fondé sur l'équation de Schrödinger Non-Linéaire a été développé. Grâce à des optimisations analytiques, des résultats 3D sont correctement approchés avec un temps de calcul fortement réduit. La présence de défauts induits dans le matériau par les impulsions laser successives est introduite, mettant en exergue l'effet d'accumulation dans le matériau. Le modèle est comparé à des résultats expérimentaux. Des études paramétriques sont réalisées pour des trains jusqu'à une centaine d'impulsions. Il en ressort notamment que l'ajustement de l'intensité des impulsions au sein du train, du délai entre deux impulsions et du taux de dérive spatiale en fréquence permet d'augmenter l'énergie déposée et de contrôler la géométrie du dépôt.

Mots-clés Matériaux diélectriques, impulsions laser femtosecondes, train d'impulsions laser, mise en forme de faisceaux

Laboratoire d'accueil Centre Lasers Intenses et Applications (C.E.L.I.A.), 43 rue Pierre Noailles, domaine du Haut Carré, 33400 TALENCE.

Title Material structuring by a train of spatially chirped femtosecond laser pulses.

Abstract Nowadays, femtosecond laser pulses are widely used to induce structural modifications within dielectric materials. Because of their large bandgap, those materials are transparents to visible light, and become absorbing for high intensities. This nonlinear feature of the interaction is responsible for a threshold intensity during the interaction, and allow one to induce localized energy deposition in the volume of the material. However, the control of both localization and geometry of the energy deposition requires a fine adjustment of the laser parameters. Currently, the influence of the laser energy and numerical aperture are well known. However, the spatio-temporal shaping of the laser energy distribution, through a spatial chirp in a direction transverse to the laser propagation, is a promising approach still to be investigated. The present work aims at studying the shaping of femtosecond laser pulse train, for intensity around the interaction threshold, and moderate focusing conditions. First, spatially chirped laser pulses are studied using the 3D Maxwell solver ARCTIC. Relevant laser configuration are identified and implemented in ARCTIC. The results demonstrate the possibility to control the direction of the ionization front and the shape of the energy deposition. A model has been developed to evaluate the geometry of the resulting structure. Then, in order to study multiple laser pulses interacting with a material, a propagation model based on NonLinear Schrödinger equation is developed. Using analytical optimization, 3D results are correctly predicted with very low computation cost. The influence of laser induced defects in the material is introduced as well as the incubation effect during multi-pulse irradiation. The model is validated against experimental results. Parametric studies are done for a train up to a hundred of laser pulses. It is shown that the energy deposition can be controlled by tuning the intensity distribution within the train.

Keywords Dielectric material, femtosecond laser pulses, train of laser pulses, beam shaping

Remerciements

Contrairement aux laser femtosecondes, l'aboutissement d'une thèse n'est pas un processus ultra-rapide. Ce travail s'achève après de longues et belles années passées au CELIA, en compagnie de nombreuses personnes qu'il convient de remercier ici.

En premier lieu, je remercie David Grojo et Arnaud Couairon qui ont accepté le rôle de rapporteur, et dont les remarques ont permis d'apporter des précisions importantes au manuscrit. Merci également à Stéphane Guizard et Jean-Philippe Colombier d'avoir évalué ce travail, et dont les questions et remarques ont apporté des pistes de réflexion intéressantes.

Je tiens à remercier très sincèrement mes deux directeurs de thèse, Guillaume Duchateau et Benoît Chimier, qui m'ont permis par leur compétence scientifique et leur patience de mener à bien ce projet de thèse, tout en me rendant fier de mon travail. Vous avez toujours maintenu le cap, été disponibles et réactifs, et m'avez soutenu et encouragé dans les moments les plus difficiles. Grâce à vous j'ai beaucoup appris sur la physique et la recherche, mais aussi sur moi. J'espère ne pas vous avoir donné trop de cheveux blancs !

Il n'est de bons remerciements sans une liste interminable et pourtant non-exhaustive des personnes qui ont foulé le plancher du CELIA. Merci à mes collègues doctorants et post-doctrants, Adrien, Paul, Thibault, Vic, Léo, Julien, Romain, Erwan, Antoine, Kévin, Corisande, Alexandro, Arthur, Pedro, Guilhem, Dimitri, Arthur (encore !)... On aura passé de bons moments, depuis les discussions professionnelles jusqu'aux discussions de comptoirs.

J'exprime ma gratitude à l'ensemble du personnel du CELIA qui nous accompagne au quotidien. Merci à Céline, Sonia, Pascale et Sophie pour votre support dans les démarches administratives. Un grand merci à Richard et Gaëtan pour votre travail colossal, et tout simplement, pour nous permettre de travailler !

Je remercie finalement mes amis proches qui se reconnaîtront, mon frère et mes parents qui m'ont soutenu et encouragé à tous les niveaux.

"*La science est l'asymptote de la vérité.*
Elle approche sans cesse et ne touche jamais."
Victor Hugo

Table des matières

Introduction générale **1**
Références 8

1 Interaction laser-diélectrique pour la structuration en régime femtoseconde **13**
1.1 Phénoménologie de l'interaction laser-diélectrique 14
1.2 Dynamique électronique et chauffage du réseau 17
1.2.1 Photoionisation 17
1.2.2 Chauffage des électrons de conduction 20
1.2.3 Description des collisions 22
1.2.4 Ionisation par impact 24
1.2.5 Relaxation électronique et formation des défauts 28
1.2.6 Modèle à deux températures 31
1.3 Propriétés optiques sous champ laser 34
1.3.1 Modèle de Drude 35
1.3.2 Modèle de Drude-Lorentz 37
1.3.3 Influence de l'état thermodynamique 38
1.3.3.1 Influence de la densité 39
1.3.3.2 Influence de la température 41
1.4 Propagation laser 42
1.4.1 Cas général : origine des effets non-linéaires 42
1.4.2 Équation de Schrödinger non-linéaire 44
1.4.3 Propagation linéaire 45
1.4.3.1 Équation paraxiale 46
1.4.3.2 Impulsion gaussienne 47
1.4.4 Couplages spatio-temporels 48
1.4.4.1 Optique matricielle 48
1.4.4.2 Matrices de Kostenbauder et couplages spatiotemporels . . . 50
1.5 Mise en forme spatio-temporelle des impulsions 52
1.5.1 Focalisation spatio-temporelle 52
1.5.2 Régime multi-impulsionnel 54

1.6 Synthèse . . . 56
Références . . . 57

2 Focalisation spatio-temporelle dans la silice fondue 63
2.1 Motivation et cadre de l'étude . . . 64
2.2 Caractéristiques d'une impulsion spatialement et temporellement focalisée . . . 65
2.2.1 Configuration pour la focalisation saptio-temporelle . . . 66
2.2.1.1 Description de l'impulsion laser d'après les données de la littérature . . . 66
2.2.1.2 Description de l'impulsion laser d'après le formalisme matriciel 68
2.2.2 Résolution de l'équation de propagation . . . 71
2.2.3 Évolution des caractéristiques de l'impulsion lors de la propagation . . . 72
2.2.3.1 Évolutions du waist et de la durée . . . 73
2.2.3.2 Intensité, fluence et longueur d'onde . . . 75
2.3 Simulation de l'interaction d'une impulsion focalisée spatialement et temporellement dans la silice . . . 79
2.3.1 Code ARCTIC et paramètres des simulations . . . 79
2.3.2 Dépôt d'énergie et dynamique électronique . . . 81
2.3.3 Contrôle du rapport d'aspect des structures . . . 88
2.4 Synthèse . . . 92
Références . . . 95

3 Interaction d'un train d'impulsions avec un matériau diélectrique 99
3.1 Motivation et cadre de l'étude . . . 100
3.2 Modélisation en régime multi-impulsionnel . . . 101
3.2.1 Dérivation d'une équation de Schrödinger non-linéaire . . . 101
3.2.2 Optimisations analytiques . . . 103
3.2.3 Résolution numérique . . . 106
3.2.4 Excitation et relaxation du matériau . . . 109
3.3 Validation du modèle . . . 111
3.3.1 Comparaison au code ARCTIC . . . 111
3.3.2 Comparaison à une expérience en régime multi-impulsionnel . . . 114
3.4 Interaction d'un train d'impulsions avec la silice . . . 118
3.4.1 Influence du taux de répétition . . . 118
3.4.2 Influence de la dérive spatiale en fréquence . . . 120
3.4.3 Influence de la distribution en intensité du train d'impulsions . . . 125
3.5 Synthèse . . . 128
Références . . . 130

Conclusion et perspectives 133

A Fonctions spéciales 137

B Transformées de Fourier **139**

C Dérivation de l'Equation de Schrödinger non-linéaire **141**

Glossaire **147**

Publications et contributions **149**

Introduction générale

De nos jours, les lasers sont largement utilisés que ce soit dans le cadre de recherches fondamentales ou de procédés industriels. Avec le développement de lasers femtosecondes à haute cadence de répétition, telle que le délai entre deux impulsions est inférieur à la durée de diffusion thermique du matériau (cadence typiquement supérieure au MHz), il est maintenant possible de modifier localement la structure de tout type de matériau avec une précision micrométrique voire sub-micrométrique. Ce type de traitement, appelé structuration de matériaux par laser, peut s'effectuer en surface pour tout type de matériau, ou en volume particulièrement dans le cas des diélectriques. Le traitement en surface peut être conjoint ou non à l'ablation de matière, et concerne essentiellement les applications suivantes [1] :

- l'écriture ou gravure d'information, notamment pour la conception de circuits intégrés ;
- le nettoyage par laser, visant à l'ablation de substances non désirées telles que les impuretés ou des régions oxydées ;
- la fabrication additive, consistant à construire une pièce par superposition d'un ensemble de couches de matériaux, soudées entre elles par laser ;
- la texturation, notamment pour la création de surface anti-réfléchissantes [2] ou hydrophobes [3].

Le traitement en volume, généralement associées aux matériaux transparents ou matériaux diélectriques, réfère quant à lui aux applications principales suivantes [1, 4] :

- les procédés de micro-usinage comme la découpe, le perçage ou le fraisage ;
- la création de cavités, notamment pour le stockage d'information ;
- l'inscription de guide d'ondes, reposant sur une légère modification de l'indice de réfraction en vue de créer des circuits photoniques intégrés.

Dans le cas de matériaux diélectriques, l'absorption laser est un processus non-linéaire induisant un seuil en intensité (de l'ordre du $\mathrm{TW/cm^2}$ pour la silice) en dessous duquel la structure du matériau irradié n'est pas modifiée de manière permanente. Cette particularité de l'interaction laser-diélectrique offre la possibilité de structurer en volume ce type de matériaux. On distingue généralement trois types de modifications de la structure dépendant de l'énergie laser absorbée par la matière :

- **La modification de type I** (voir la Fig. 1) correspond à une variation Δn isotrope et généralement positive de l'indice de réfraction [5]. Elle est obtenue pour des intensités

laser modérées, proche du seuil d'ionisation. Ce type de modification est largement utilisé pour la création de guides d'onde avec des variations positives d'indice de quelques 10^{-4} à 10^{-2} [6] et le stockage d'informations 3D [7]. Dans le cas de la silice, cette augmentation de l'indice de réfraction est généralement attribuée à la densification du matériau du fait de la réorganisation structurelle du matériau [8].

- **La modification de type II** correspond à une variation non-isotrope de l'indice, c'est-à-dire une structure biréfringente. Le passage du type I au type II est favorisé par une plus forte focalisation du faisceau [5]. L'irradiation en régime multi-impulsionnel augmente le contraste entre les deux régions de la structure, par effet d'accumulation [9]. Dans la silice, cette anisotropie provient de l'apparition de structures périodiques appelées nanoréseaux, de période inférieure à la longueur d'onde, consistant en des couches (strates) espacées d'une distance proportionnelle à la longueur d'onde. Les structures résultantes ayant une dimension inférieure à la longueur d'onde, ce type de modification présente un fort potentiel pour le stockage optique 3D à haute densité.
- **La modification de type III** (voir la Fig. 2) correspond à la formation de cavités entourées de zones sur-denses [10]. Ces structures sont obtenues lorsque la densité d'énergie absorbée est suffisamment importante, éjectant la matière du point cible par choc ou micro-explosion [11]. Des structures nanométriques obtenues de cette manière peuvent être utilisées pour le stockage d'information 3D [12].

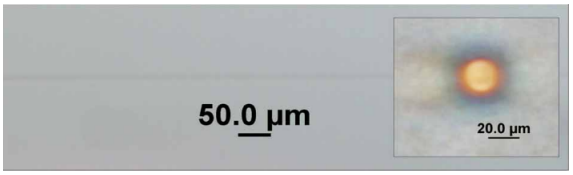

FIGURE 1 – Guide d'onde et sa coupe transverse, inscrit par laser dans un verre phosphate [13]. La variation relative de l'indice entre le coeur et le bord de la structure est de 10^{-3}.

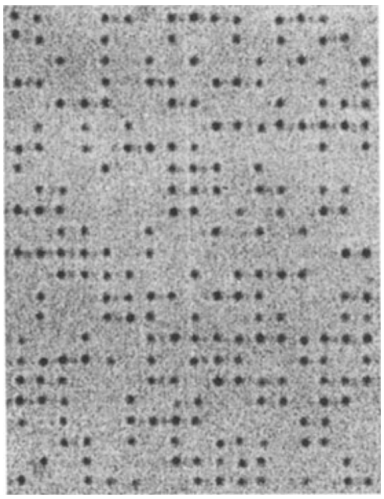

FIGURE 2 – Cavités créées par laser pour le stockage optique 3D dans un photopolymère [12]. Deux bits d'environ 100 nm de dimension sont espacés de 2 μm.

On peut dégager trois critères importants devant être contrôlés dans le cadre de la structuration en volume : la géométrie du dépôt d'énergie, la quantité d'énergie absorbée (liée au type de modification), et la localisation du dépôt d'énergie. Le contrôle simultané de ces trois aspects constitue un défi technique dont la résolution est poursuivie par différentes approches.

Afin de déposer une plus grande quantité d'énergie au sein de l'échantillon, il est naturel de chercher à augmenter l'énergie de l'impulsion laser. Cependant, cette augmentation se traduit par le dépassement de l'intensité seuil en amont du point focal, limitant la précision du dépôt d'énergie. La figure 3 présente les coupes transverse dans le volume d'un échantillon de silice irradiées par des impulsions laser de différentes énergies [14]. Les dépôts présentent une forme de larme, caractéristique des impulsions gaussiennes [14, 15]. Avec l'augmentation de l'énergie laser, l'intensité seuil pour l'absorption est atteinte plus en amont du plan focal. Il en résulte une plus grande extension des structures et une densité maximale d'énergie déposée globalement constante. L'augmentation de l'énergie est donc réalisée au détriment de la précision du dépôt sans augmentation du chauffage. Notons que pour de fortes puissances et une relativement longue distance de propagation, les impulsions subissent un phénomène non-linéaire appelé auto-focalisation [16] qui contribue également à déposer l'énergie en amont du plan focal.

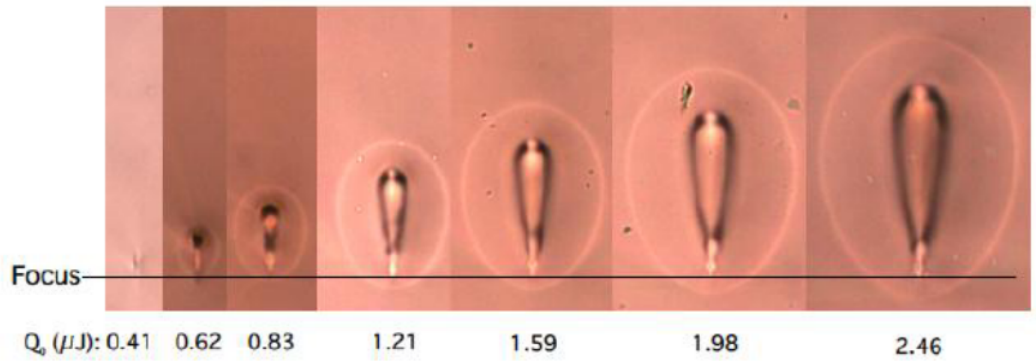

FIGURE 3 – Coupe transverse au sein d'un échantillon de silice pour différentes énergies laser. La zone impactée s'étend plus loin du plan focal avec l'augmentation de l'énergie [14]. Les impulsions laser (500 kHz, 1064 nm, 10 ps, 1.2 μm) se propagent depuis le haut vers le bas.

La géométrie des structures, la densité d'énergie absorbée et la localisation du dépôt peuvent être contrôlés par l'ajustement des paramètres laser. On résume ici les paramètres principaux :

- **L'énergie de l'impulsion** ou bien son intensité est un paramètre essentiel influençant l'ensemble des critères. La variation de l'intensité conduit de manière évidente à la variation des dimensions de la structure, du fait de l'existence d'un seuil en intensité pour l'absorption. Pour une focalisation modérée, des modifications de type I sont obtenues expérimentalement pour des intensités proches du seuil d'ionisation, les types

II et III étant obtenus focalisant plus fortement l'impulsion [17]. Enfin, des travaux théoriques [18] et expérimentaux [14] révèlent un dépôt d'énergie en amont du point focal. Cet effet est atténué par la diminution de l'énergie.

- **L'ouverture numérique** NA décrit la focalisation de l'impulsion laser, et ainsi la taille et la forme du volume focal. On distingue trois régimes de focalisation :
  * La faible focalisation ($NA \sim 0.1$) correspond à un régime dans lequel l'auto-focalisation est compensée par la défocalisation induite par le plasma au cours de la propagation (pour une distance de propagation suffisamment longue), processus appelé filamentation [16]. La densité électronique modérée s'étend en direction de la source laser [11].
  * La focalisation modérée ($NA \sim 0.3$) correspond à une focalisation à la limite des conditions paraxiales (pas de réflexion de l'impulsion). L'énergie est déposée aux alentours du plan focal, et on peut observer un déplacement du maximum de la densité électronique (valant une fraction de la densité critique, typiquement quelques $\sim 10^{20}\text{cm}^{-3}$ pour une longueur d'onde de 1 μm) vers la source laser [18]. La forme du dépôt d'énergie présente une forme de "larme" [15].
  * La forte focalisation ($NA > 0.5$) est un régime pouvant conduire à des densités électroniques de l'ordre de la densité critique (typiquement quelques $\sim 10^{21}\text{cm}^{-3}$) et une densité d'énergie de l'ordre du MJ/cm^3 [19]. Le dépôt d'énergie est localisé plus proche du plan focal avec une dimension réduite [19].

  L'augmentation de l'ouverture numérique permet de diminuer la taille du volume focal et donc de la structure associée. La forte focalisation de faisceaux gaussiens permet de générer des structures 3D sphériques [12]. Une grande ouverture numérique limite l'écrantage et la réflexion induite par le plasma et favorise l'absorption dans le volume du matériau [20]. Notons également que l'énergie seuil d'endommagement des matériaux diminue avec l'augmentation de l'ouverture numérique [21], puisqu'elle entraîne conjointement une augmentation de l'intensité.

- **La durée de l'impulsion** modifie l'intensité pour une énergie laser constante, sa variation a donc un effet drastique sur l'interaction. Les effets de propagation non-linéaire sont sensibles à la durée de l'impulsion, modifiant la distribution de l'énergie déposée dans le matériau [22]. Une courte durée tend à limiter le processus d'ionisation par impact [23] et donc l'avalanche électronique qui en découle. L'avalanche est globalement délétère au dépôt d'énergie en raison de la forte augmentation de la densité électronique qu'elle entraîne, conduisant à l'écrantage de l'impulsion laser [20]. Les impulsions femtosecondes et piscosecondes se sont largement imposées devant les impulsions nanosecondes pour la structuration de matériaux diélectriques, puisqu'elles permettent un endommagement plus régulier et donc une meilleur reproductibilité des structures [24]. Notons que pour des impulsions suffisamment courtes, typiquement inférieures à 50 fs, des effets liés au spectre des impulsions peuvent apparaître.

- **La longueur d'onde** influe principalement sur le taux de photoionisation et sur l'absorption de l'énergie. Les courtes longueurs d'onde augmentent le taux d'ionisation mais le chauffage des électrons de conduction est moins efficace.
- **La mise en forme de l'impulsion**, c'est-à-dire la distribution spatiale et temporelle de l'intensité est choisie selon la géométrie désirée pour la structure. L'impulsion la plus couramment considérée est l'impulsion gaussienne, à partir de laquelle divers types d'impulsions peuvent être obtenues. On distinguera la mise en forme spatiale de la mise en forme spatio-temporelle :
  * La **mise en forme spatiale** vise a modifier la géométrie du faisceau. Les impulsions de Bessel-Gauss en sont un exemple très répandu. Leur nature non-diffractante [25] permet un dépôt d'énergie en profondeur dans le matériau. Elles sont utilisées afin de créer des structures à haut rapport d'aspect, comme des guides d'onde et des micro-canaux. D'autres profils spatiaux permettent d'obtenir des impulsions présentant une distribution rectangulaire [26], triangulaire ou annulaire avec une résolution de l'ordre de 20 μm. [27].
  * La **mise en forme spatio-temporelle** permet de coupler les évolutions des distributions spatiale et temporelle de l'intensité. Une méthode d'intérêt est appelée focalisation spatio-temporelle [28]. En introduisant une dérive spatiale des fréquences dans la direction transverse à la propagation, la durée de l'impulsion diminue lors de la focalisation, au même titre que le waist [28], introduisant un degré de liberté supplémentaire [29] afin de maîtriser la dynamique de l'interaction et la forme de la structure observée [30]. De plus, une propriété singulière de la focalisation spatio-temporelle est l'asymétrie du dépôt d'énergie résultant de l'interaction [18, 30]. Enfin on notera que si cette méthode est utilisée en régime multi-impulsionnel, la direction de translation du laser modifie la géométrie du dépôt [29]. Ce phénomène, appelé inscription non réciproque, pourrait être sous-tendu par plusieurs mécanismes dont la prépondérance resterait encore à discriminer.
- **La mise en forme du train d'impulsion** correspond à la possibilité de moduler certains paramètres au sein d'un train d'impulsions laser. Le paramètre fondamental est le taux de répétition laser, soit le nombre d'impulsions émises par seconde. Il détermine le régime d'accumulation de l'énergie et l'évolution du matériau entre deux impulsions, en termes de densité électronique, de défauts transitoires, de température du réseau, de densité du matériau ou d'indice optique. Pour la structuration de matériaux, les taux de répétitions varient de 100 kHz à 100 GHz [15, 31, 32]. Il est également possible de distribuer l'énergie au sein du train impulsion par impulsion, dessinant ainsi une enveloppe temporelle au sein du train, et pouvant augmenter le dépôt d'énergie au sein du matériau [33].

Ainsi, afin d'augmenter l'énergie déposée dans le matériau sans nuire à la localisation, on retiendra deux possibilités. La première consiste à focaliser fortement le faisceau en augmen-

tant son ouverture numérique, en vue d'atteindre l'intensité seuil plus proche du plan focal. Le volume focal est dans ce cas réduit, ce qui peut constituer un désagrément si un relativement grand volume de matière doit être structuré. La deuxième méthode consiste à utiliser un grand nombre d'impulsions modérément focalisées, avec une intensité proche du seuil d'interaction. Dans les deux cas, une mise en forme spatiale de l'impulsion est requise afin de contrôler la géométrie de la structure, par exemple à travers la méthode de focalisation spatio-temporelle. On retiendra ici la deuxième méthode.

La modélisation de la propagation et l'interaction d'impulsions femtosecondes avec les diélectriques permet de comprendre les mécanismes mis en jeu, et constitue un appui indispensable pour le développement, le dimensionnement et l'interprétation des expériences. Ce type d'étude nécessite une approche multi-échelle et multi-physique, allant de la propagation laser, passant par l'interaction dynamique entre le champ laser et le matériau à l'échelle femtoseconde, jusqu'à la réponse macroscopique de la matière à l'échelle microseconde. Si de tels modèles existent et sont bien connus, il existe actuellement peu d'études théoriques concernant l'interaction de multiples impulsions successives dans le volume des matériaux diélectriques. La raison est le coût numérique important des modèles de propagation non-linéaire des impulsions laser. Seules deux études existent actuellement en régime multi-impulsionnel [15, 18]. Elles ont notamment étudié l'évolution de la géométrie du dépôt d'énergie avec le nombre d'impulsions. Cependant, le coût numérique des simulations est clairement souligné, et constitue donc une contrainte en vue de réaliser des études portant sur un plus grand nombre d'impulsions et de paramètres. Par ailleurs, la méthode de focalisation spatio-temporelle a été étudiée dans le vide de manière théorique [34], mais seules deux études l'utilisent dans le cadre de l'interaction avec un matériau [18, 35]. L'une, en régime multi-impulsionnel, utilise les équations de Maxwell en deux dimensions. Elle fournit ainsi des résultats qualitatifs concernant cette méthode, le caractère bi-dimensionnel de l'étude modifiant la géométrie du dépôt d'énergie. De plus, un nombre assez restreint de simulations est réalisé. Certains mécanismes à l'oeuvre méritent donc d'être mieux compris à travers des études paramétriques plus conséquentes. En conclusion, l'absence d'un modèle de propagation plus efficace en régime multi-impulsionnel est actuellement une contrainte forte pour l'étude de l'interaction avec les matériau diélectriques. Il est nécessaire de développer un tel modèle, et de poser un cadre d'intérêt pour décrire et étudier la focalisation spatio-temporelle des impulsions.

L'objectif de ce travail de thèse est donc d'étudier théoriquement l'interaction de multiples impulsions laser modérément focalisées, d'intensité proche du seuil d'interaction, et présentant une mise en forme spatiale et/ou temporelle. Il sera donc question de contrôler simultanément l'énergie déposée dans le matériau, la localisation et la géométrie de ce dépôt.

Ce travail de thèse est divisé en trois chapitres. Le premier chapitre présente l'ensemble des outils théoriques utilisés dans ce manuscrit. En s'appuyant sur les données théoriques et expérimentales de la littérature, les modèles les plus pertinents sont présentés compte tenu du cadre d'étude. La dynamique électronique sera d'abord parcourue depuis la photoioni-

sation décrite par le modèle de Keldysh [36], en passant par le chauffage des électrons de conduction via le modèle de Drude, puis l'ionisation par impact avec le modèle de Peñano [37]. On discutera également des collisions des électrons, de la formation de défauts transitoires et permanents dans le matériau, ainsi que du transfert de leur énergie vers le réseau avec un modèle à deux températures. En second lieu, les propriétés optiques du matériau excité par laser seront exposées à travers les modèles de Drude et de Drude-Lorentz. L'importance des variations de température et de densité sur la propagation laser seront également évaluées. Par la suite, la propagation laser sera abordée. On présentera l'origine des effets non-linéaires sur la propagation d'une impulsion à partir des équations de Maxwell, et la notion de couplage spatio-temporel sera ensuite exposée. Finalement, on présentera la focalisation spatio-temporelle des impulsions et la mise en forme de trains d'impulsions.

Le second chapitre porte sur la modélisation de la propagation et l'interaction d'une unique impulsion laser avec dérive spatiale en fréquence dans la silice fondue. Dans un premier temps, les caractéristiques d'une impulsion avec dérive spatiale en fréquence seront étudiées. Pour cela, on déterminera une configuration d'intérêt pour la focalisation spatio-temporelle à partir du formalisme matriciel de l'optique géométrique et des données de la littérature. En résolvant ensuite l'équation paraxiale, on déduira l'évolution des caractéristiques de cette impulsion au cours de sa propagation dans le vide. Dans un second temps, l'impulsion à dérive spatiale en fréquence sera injectée dans le code ARCTIC développé au CELIA, résolvant les équations de Maxwell en trois dimensions couplées à la dynamique électronique pour étudier sa propagation dans la silice. En faisant varier le taux de dérive spatiale et l'intensité laser, on mettra en évidence que la direction du front d'ionisation peut être contrôlée. Finalement, on montrera la possibilité de contrôler le rapport d'aspect du dépôt d'énergie à partir du taux de dérive spatiale en fréquence et l'on proposera un modèle simple prédisant ce rapport d'aspect.

Le troisième chapitre porte sur l'interaction de multiples impulsions avec la silice. On présentera dans un premier temps le modèle permettant cette étude. La dérivation d'une équation de propagation basée sur l'équation de Schrödinger non-linéaire sera d'abord réalisée. En tirant parti des conditions laser modérées considérées dans ce travail, et en s'appuyant sur la solution de l'équation paraxiale, on proposera un nouveau modèle de propagation permettant d'approcher des résultats 3D avec une réduction très importante du temps de calcul numérique. La formation des défauts transitoires et permanents sera introduite afin d'étudier l'effet mémoire lié à ces défauts en régime multi-impulsionnel. Dans un second temps, le modèle développé sera validé en le confrontant au code ARCTIC et à des résultats expérimentaux en régime multi-impulsionnel. Finalement, le modèle sera appliqué à la simulation de trains de quelques centaines d'impulsions. L'influence du taux de dérive spatiale en fréquence sur l'absorption de l'énergie et sur la géométrie du dépôt d'énergie sera mise en évidence, de même que la mise en forme du train d'impulsions.

Références

[1] Rüdiger Paschotta. *Encyclopedia of Laser Physics and Technology*. Anglais. Wiley-VCH Verlag GmbH, 2008.

[2] Andrey A. Bushunov, Mikhail K. Tarabrin et Vladimir A. Lazarev. "Review of Surface Modification Technologies for Mid-Infrared Antireflection Microstructures Fabrication". In : *Laser and Photonics Reviews* 15.5 (mai 2021).

[3] Bo Wu, Ming Zhou, Jian Li, Xia Ye, Gang Li et Lan Cai. "Superhydrophobic surfaces fabricated by microstructuring of stainless steel using a femtosecond laser". In : *Applied Surface Science* 256.1 (oct. 2009), p. 61-66.

[4] Razvan Stoian. "Volume photoinscription of glasses : three-dimensional micro- and nanostructuring with ultrashort laser pulses". In : *Applied Physics A* 126.6 (mai 2020), p. 438.

[5] Konstantin Mishchik. "Ultrafast laser-induced modification of optical glasses : a spectroscopy insight into the microscopic mechanisms". Thèse de doct. Université Jean Monnet - Saint-Etienne, juill. 2012.

[6] K. M. Davis, K. Miura, N. Sugimoto et K. Hirao. "Writing waveguides in glass with a femtosecond laser". In : *Optics Letters* 21.21 (nov. 1996), p. 1729-1731.

[7] Jianrong Qiu, Kiyotaka Miura et Kazuyuki Hirao. "Three-Dimensional Optical Memory Using Glasses as a Recording Medium through a Multi-Photon Absorption Process". In : *Japanese Journal of Applied Physics* 37.4S (avr. 1998), p. 2263.

[8] J. W. Chan, T. Huser, S. Risbud et D. M. Krol. "Structural changes in fused silica after exposure to focused femtosecond laser pulses". In : *Optics Letters* 26.21 (nov. 2001), p. 1726-1728.

[9] K. Mishchik, G. Cheng, G. Huo, I. M. Burakov, C. Mauclair, A. Mermillod-Blondin, A. Rosenfeld, Y. Ouerdane, A. Boukenter, O. Parriaux et R. Stoian. "Nanosize structural modifications with polarization functions in ultrafast laser irradiated bulk fused silica". In : *Optics Express* 18.24 (nov. 2010), p. 24809-24824.

[10] E. N. Glezer et E. Mazur. "Ultrafast-laser driven micro-explosions in transparent materials". In : *Applied Physics Letters* 71.7 (août 1997), p. 882-884.

[11] E. G. Gamaly, L. Rapp, V. Roppo, S. Juodkazis et A. V. Rode. "Generation of high energy density by fs-laser-induced confined microexplosion". In : *New Journal of Physics* 15.2 (fév. 2013), p. 025018.

[12] E. N. Glezer, M. Milosavljevic, L. Huang, R. L. Finlay, T.-H. Her, J. P. Callan et E. Mazur. "3-D Optical Storage and Engraving Inside Transparent Materials". In : *Ultrafast Phenomena X*. Sous la dir. de Paul F. Barbara, James G. Fujimoto, Wayne H. Knox et Wolfgang Zinth. Springer Berlin Heidelberg, 1996, p. 157-158.

[13] M. Ams, G. D. Marshall, D. J. Spence et M. J. Withford. "Slit beam shaping method for femtosecond laser direct-write fabrication of symmetric waveguides in bulk glasses". In : *Optics Express* 13.15 (juill. 2005), p. 5676-5681.

[14] Isamu Miyamoto, Kristian Cvecek et Michael Schmidt. "Evaluation of nonlinear absorptivity in internal modification of bulk glass by ultrashort laser pulses". In : *Optics Express* 19.11 (mai 2011), p. 10714-10727. issn : 1094-4087.

[15] O. Dematteo Caulier, K. Mishchik, B. Chimier, S. Skupin, A. Bourgeade, C. Javaux Léger, R. Kling, C. Hönninger, J. Lopez, V. Tikhonchuk et G. Duchateau. "Femtosecond laser pulse train interaction with dielectric materials". In : *Applied Physics Letters* 107 (nov. 2015), p. 181110.

[16] F. V. Potemkin, E. I. Mareev, A. A. Podshivalov et V. M. Gordienko. "Highly extended high density filaments in tight focusing geometry in water : from femtoseconds to microseconds". In : *New Journal of Physics* 17.5 (mai 2015). Publisher : IOP Publishing, p. 053010.

[17] K. Mishchik, C. D'Amico, P. K. Velpula, C. Mauclair, A. Boukenter, Y. Ouerdane et R. Stoian. "Ultrafast laser induced electronic and structural modifications in bulk fused silica". In : *Journal of Applied Physics* 114.13 (oct. 2013), p. 133502.

[18] Vladimir P. Zhukov, Selcuk Akturk et Nadezhda M. Bulgakova. "Asymmetric interactions induced by spatio-temporal couplings of femtosecond laser pulses in transparent media". In : *JOSA B* 36.6 (juin 2019), p. 1556-1564.

[19] Eugene G. Gamaly, Saulius Juodkazis et Andrei V. Rode. "Extreme Energy Density Confined Inside a Transparent Crystal : Status and Perspectives of Solid-Plasma-Solid Transformations". In : *Nanomaterials* 8.7 (juill. 2018), p. 555.

[20] R. Beuton, B. Chimier, P. Quinoman, P. González Alaiza de Martínez, R. Nuter et G. Duchateau. "Numerical studies of dielectric material modifications by a femtosecond Bessel–Gauss laser beam". In : *Applied Physics A* 127.5 (avr. 2021), p. 334.

[21] Jonathan B. Ashcom, Rafael R. Gattass, Chris B. Schaffer et Eric Mazur. "Numerical aperture dependence of damage and supercontinuum generation from femtosecond laser pulses in bulk fused silica". In : *JOSA B* 23.11 (nov. 2006), p. 2317-2322.

[22] I. M. Burakov, N. M. Bulgakova, R. Stoian, A. Mermillod-Blondin, E. Audouard, A. Rosenfeld, A. Husakou et I. V. Hertel. "Spatial distribution of refractive index variations induced in bulk fused silica by single ultrashort and short laser pulses". In : *Journal of Applied Physics* 101.4 (fév. 2007), p. 043506.

[23] Nikita S. Shcheblanov, Elena P. Silaeva et Tatiana E. Itina. "Electronic excitation and relaxation processes in wide band gap dielectric materials in the transition region of the Keldysh parameter". In : *Applied Surface Science* 258 (sept. 2012), p. 9417-9420.

[24] Matthias Lenzner et Wolfgang Rudolph. "Laser-Induced Optical Breakdown in Solids". en. In : *Strong Field Laser Physics*. Sous la dir. de Thomas Brabec. Springer

Series in Optical Sciences. Springer, 2009, p. 243-257. ISBN : 978-0-387-34755-4. DOI : 10.1007/978-0-387-34755-4_11.

[25] Francois COURVOISIER. "Ultrafast Laser Micro-Nano Structuring of Transparent Materials with High Aspect Ratio". In : *Handbook of Laser Micro- and Nano-Engineering*. Sous la dir. de Koji SUGIOKA. Springer International Publishing, 2020, p. 1-37.

[26] O. HOMBURG et T. MITRA. "Gaussian-to-top-hat beam shaping : an overview of parameters, methods, and applications". In : *Laser Resonators, Microresonators, and Beam Control XIV*. T. 8236. SPIE, fév. 2012, p. 62-70.

[27] N. SANNER, N. HUOT, E. AUDOUARD, C. LARAT et J. -P. HUIGNARD. "Direct ultrafast laser micro-structuring of materials using programmable beam shaping". In : *Optics and Lasers in Engineering* 45.6 (juin 2007), p. 737-741.

[28] Guanghao ZHU, James van HOWE, Michael DURST, Warren ZIPFEL et Chris XU. "Simultaneous spatial and temporal focusing of femtosecond pulses". In : *Optics Express* 13.6 (mars 2005), p. 2153-2159.

[29] Aabid PATEL, Yuri SVIRKO, Charles DURFEE et Peter G. KAZANSKY. "Direct Writing with Tilted-Front Femtosecond Pulses". In : *Scientific Reports* 7.1 (oct. 2017), p. 1-14.

[30] Fei HE, Ya CHENG, Jintian LIN, Jielei NI, Zhizhan XU, Koji SUGIOKA et Katsumi MIDORIKAWA. "Independent control of aspect ratios in the axial and lateral cross sections of a focal spot for three-dimensional femtosecond laser micromachining". In : *New Journal of Physics* 13.8 (août 2011), p. 083014.

[31] K. MISHCHIK, R. BEUTON, O. Dematteo CAULIER, S. SKUPIN, B. CHIMIER, G. DUCHATEAU, B. CHASSAGNE, R. KLING, C. HÖNNINGER, E. MOTTAY et J. LOPEZ. "Improved laser glass cutting by spatio-temporal control of energy deposition using bursts of femtosecond pulses". In : *Optics Express* 25.26 (déc. 2017), p. 33271-33282.

[32] Caterina GAUDIUSO, Giuseppe GIANNUZZI, Annalisa VOLPE, Pietro Mario LUGARÀ, Isabelle CHOQUET et Antonio ANCONA. "Incubation during laser ablation with bursts of femtosecond pulses with picosecond delays". In : *Optics Express* 26.4 (fév. 2018), p. 3801-3813.

[33] Minming NIE, Xueze CAO, Qianag LIU, Encai JI et Xing FU. "100 µJ pulse energy in burst-mode-operated hybrid fiber-bulk amplifier system with envelope shaping". In : *Optics Express* 25.12 (juin 2017), p. 13557-13566.

[34] Charles G. DURFEE, Michael GRECO, Erica BLOCK, Dawn VITEK et Jeff A. SQUIER. "Intuitive analysis of space-time focusing with double-ABCD calculation". In : *Optics Express* 20.13 (juin 2012), p. 14244-14259.

[35] Yuedong LI, Juan SONG, Juan SONG, Qinxiao ZHAI, Weiyi YIN, Xinlan TANG et Ye DAI. "Effect of wavefront rotation on the photoionization process by ultrafast laser spatiotemporal focusing". In : *JOSA B* 38.4 (avr. 2021), p. 1040-1047.

[36] L. V. KELDYSH. "Ionization in the field of a strong electromagnetic wave". In : *Soviet Physics JETP* 20.5 (1965), p. 1307.

[37] J. R. Peñano, P. Sprangle, B. Hafizi, W. Manheimer et A. Zigler. "Transmission of intense femtosecond laser pulses into dielectrics". In : *Physical Review E* 72.3 (sept. 2005), p. 036412.

Chapitre 1

Interaction laser-diélectrique pour la structuration en régime femtoseconde

Sommaire

1.1 Phénoménologie de l'interaction laser-diélectrique 14
1.2 Dynamique électronique et chauffage du réseau 17
1.2.1 Photoionisation 17
1.2.2 Chauffage des électrons de conduction 20
1.2.3 Description des collisions 22
1.2.4 Ionisation par impact 24
1.2.5 Relaxation électronique et formation des défauts 28
1.2.6 Modèle à deux températures 31
1.3 Propriétés optiques sous champ laser 34
1.3.1 Modèle de Drude 35
1.3.2 Modèle de Drude-Lorentz 37
1.3.3 Influence de l'état thermodynamique 38
1.4 Propagation laser 42
1.4.1 Cas général : origine des effets non-linéaires 42
1.4.2 Équation de Schrödinger non-linéaire 44
1.4.3 Propagation linéaire 45
1.4.4 Couplages spatio-temporels 48
1.5 Mise en forme spatio-temporelle des impulsions 52
1.5.1 Focalisation spatio-temporelle 52
1.5.2 Régime multi-impulsionnel 54
1.6 Synthèse 56
Références 57

1.1 Phénoménologie de l'interaction laser-diélectrique

Ce chapitre présente une vue d'ensemble de l'interaction entre des impulsions laser femtosecondes et un matériau diélectrique. On présente dans cette section la phénoménologie liée à cette problématique : les spécificités des matériaux diélectriques, les différents processus liés à l'interaction ainsi que les échelles de temps caractéristiques qui leurs sont associées. Les sections suivantes approfondirons ces éléments en présentant les modèles utilisés dans ce travail.

Les matériaux diélectriques sont isolants électriquement et transparents à la lumière visible, comme c'est par exemple le cas pour les verres. Ces propriétés électriques et optiques proviennent de la structure en bandes des états d'énergie et de leur remplissage par les électrons. Dans un atome isolé, les niveaux d'énergie des électrons sont quantifiés, représentés par les orbitales atomiques. Les valeurs propres de l'équation de Schrödinger définissent les énergies autorisées pour les électrons. Dans un matériau solide, plusieurs atomes interagissent entre eux. Cette interaction conduit à la dégénérescence des niveaux d'énergie : plusieurs états quantiques distincts correspondent à un même niveau d'énergie. Le nombre d'atomes augmentant, ces états dégénérés donnent lieu à l'émergence d'un continuum d'états possibles autour des états discrets, c'est-à-dire à une structure en bandes des états d'énergie [1]. Ensemble, ces bandes définissent les niveaux d'énergie autorisés et interdits pour un électron.

Dans ce formalisme, on distingue une bande de valence dans laquelle les électrons sont liés à l'atome, et une bande de conduction dans laquelle ils "circulent" quasi-librement. Selon le matériau considéré, ces deux bandes peuvent être séparées par une bande dite interdite (aussi appelée gap). Pour une température de 0 K, la valeur de la bande interdite et le remplissage des bandes déterminent les propriétés du matériau. On en distingue trois types (voir Fig. 1.1) : les métaux, les semi-conducteurs et les diélectriques. Pour un métal, la bande de conduction est en partie occupée. Pour les semi-conducteurs, la bande de conduction est vide mais la bande interdite faible (1 à 2 eV). Enfin dans le cas des diélectriques, la bande de conduction est vide et la bande interdite large [2], typiquement 7 à 10 eV : 7.7 eV pour l'oxyde de magnésium [3], 8.8 eV pour le saphir [4] et 9 eV pour la silice [5], ces valeurs pouvant légèrement varier selon les sources. Le remplissage des bandes, c'est-à-dire l'occupation des états d'énergie par les électrons, est déterminé à l'équilibre par la statistique de Fermi-Dirac [1]. Cette distribution fixe notamment le niveau d'énergie du plus haut niveau occupé, aussi appelé niveau de Fermi. La position du niveau de Fermi dans la structure de bande est liée à la nature du matériau : dans les conducteurs, il est situé dans la bande de conduction, dans les diélectriques et semi-conducteurs, il est situé dans la bande interdite.

Les propriétés optiques du matériau, notamment sa capacité à absorber une radiation, découlent de sa structure de bande ainsi que de son occupation par les électrons. Pour un faible flux lumineux interagissant avec un diélectrique, un photon d'énergie $\hbar\omega$ peut être absorbé par un électron de la bande de valence et le porter en bande de conduction si l'énergie du photon est au moins égale à l'énergie du gap. C'est le processus de photoionisation. La grande

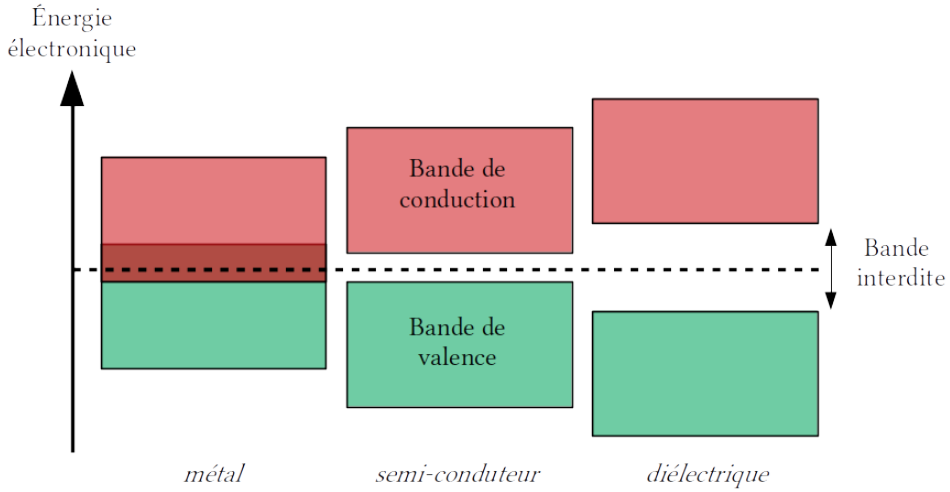

FIGURE 1.1 – Illustration de la structure de bande pour les métaux, semi-conducteurs et diélectriques.

valeur de la bande interdite de ces matériaux (plusieurs eV) devant l'énergie d'un photon infra-rouge ($\hbar\omega \leq 1$ eV) ou visible ($\hbar\omega \sim 1$ eV) explique leur transparence pour ces longueurs d'onde. Un photon du spectre visible ne peut seul promouvoir un électron vers la bande de conduction, là où la lumière ultra-violette, correspondant à des photons de plusieurs eV, permet l'ionisation des diélectriques même à basse intensité lumineuse. Dans le domaine visible ou proche infrarouge, l'excitation d'un électron de la bande de valence vers la bande de conduction nécessite l'absorption simultanée de plusieurs photons. C'est l'ionisation multiphotonique, processus rendu possible par les fortes intensités lumineuses inhérentes aux impulsions laser. Ce processus constitue la source première de l'interaction laser-diélectrique pour des photons d'énergie inférieure au gap. Son caractère non-linéaire induit un effet de seuil et conduit par la suite à un ensemble de processus physiques complexes.

Pendant et après l'irradiation d'un matériau diélectrique par une impulsion femtoseconde, différents processus d'excitation et de relaxation entrent en jeu. La figure 1.2 présente les principaux phénomènes et leurs échelles de temps caractéristiques. Ces échelles varient légèrement avec la durée et l'énergie de l'impulsion. Elles sont données ici pour une impulsion de l'ordre de 100 fs et de quelques μJ.

L'absorption des photons par le matériau via la photoionisation intervient sur toute la durée de l'impulsion laser. L'énergie laser est également absorbée par les électrons en bande de conduction par interaction électron-phonon-photon et Bremsstrahlung inverse. Lorsque l'énergie de ces électrons devient suffisante, de l'ordre de 1.5 le gap [6], ces derniers vont à leur tour ioniser d'autres électrons de la bande de valence par collisions. Si le processus se répète suffisamment, la production d'électrons devient exponentielle et on parle d'avalanche électronique. Le processus d'ionisation collisionnelle peut perdurer au-delà de la durée d'impulsion tant que les électrons en bande de conduction ont une énergie suffisante. Dans le même temps, l'énergie absorbée par les électrons est transférée au réseau avec une durée

caractéristique de l'ordre de la picoseconde via l'interaction électron-phonon. À l'échelle de quelques dizaines de picosecondes, si l'énergie accumulée par le réseau est suffisante, elle donne lieu à la formation d'une onde de pression se propageant vers la région froide du matériau [7]. L'énergie thermique se diffuse finalement en dehors du volume focal sur une échelle de temps allant de quelques nanosecondes à quelques microsecondes, en fonction de sa dimension. Selon les paramètres laser et le matériau, le dépôt d'énergie peut donner lieu à des modifications structurelles, transitoires (excitons auto-piégé) ou permanentes, des processus hydrodynamiques, des déformations permanentes ou des fractures dans le matériau [8]. Notons finalement que les impulsions femtosecondes sont bien plus courtes que les durées de diffusion thermique et de relaxation hydrodynamique, ce qui permet de décorréler la propagation laser et le dépôt d'énergie de la diffusion thermique et la réponse hydrodynamique [1]. Ainsi, une description multi-physique et multi-échelle de l'interaction est nécessaire pour rendre compte des différents phénomènes prenant place durant la structuration d'un matériau diélectrique par une impulsion laser. Les modèles associés à ces processus seront présentés au cours de ce chapitre.

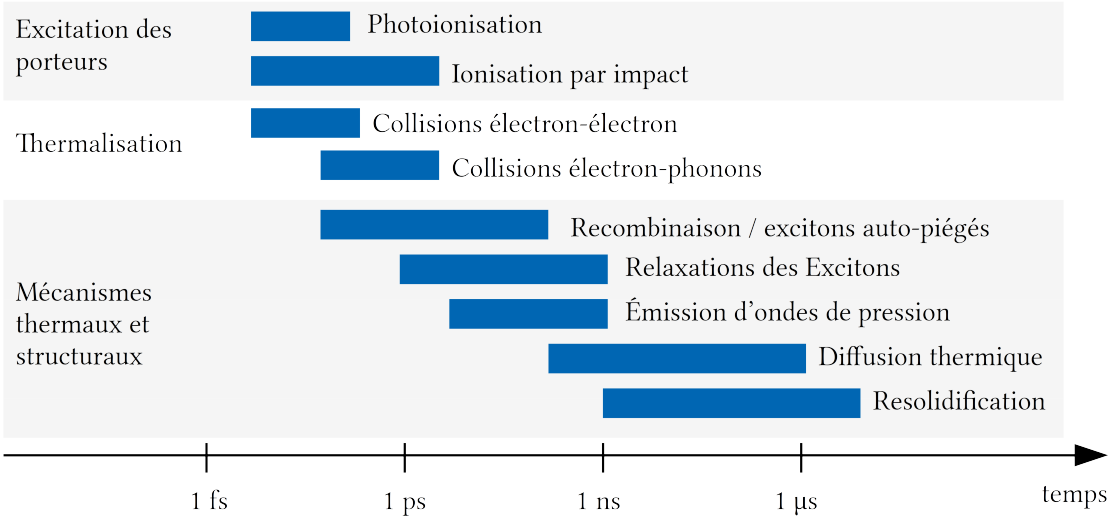

FIGURE 1.2 – Échelle de temps des différents phénomènes impliqués dans l'interaction laser-diélectrique. On distingue l'excitation électronique (échelle femto- à pico-seconde), la relaxation de ces porteurs menant à l'équilibre thermodynamique avec le réseau (échelle femto- à pico-seconde) et la modification structurelle et macroscopique du matériau (échelle nano-micro-seconde).

1. Notons que dans ce travail, la réponse hydrodynamique du matériau ne sera pas traitée, mais pourrait faire l'objet de futures études

1.2 Dynamique électronique et chauffage du réseau

Cette section porte sur la description de la dynamique électronique et le chauffage du réseau atomique dans un diélectrique soumis à un champ laser. Sur la figure 1.2, ces processus correspondent à l'excitation des porteurs, la thermalisation, la recombinaison et la relaxation des excitons. On présentera dans un premier temps le processus de photoionisation. Le chauffage des électrons sera ensuite abordé à travers le modèle de Drude, modèle fluide, pour les électrons de conduction permettant de modéliser les propriétés optiques et électroniques d'un matériau excité. Par la suite, on détaillera la nature des collisions, et les mécanismes d'ionisation par impact et de relaxation des électrons. On décrira finalement l'évolution de l'énergie électronique et le transfert d'énergie vers le réseau à travers le modèle à deux températures.

1.2.1 Photoionisation

Comme nous l'avons précédemment expliqué, pour les matériaux dont la bande interdite est large, un photon optique ou infrarouge n'a pas assez d'énergie pour promouvoir un électron de valence vers la bande de conduction. L'absorption simultanée de plusieurs photons est donc nécessaire pour franchir le gap. On parle alors d'ionisation multiphotonique (IMP), représentée sur la figure 1.3(a). Ce processus nécessite un flux laser suffisamment élevé, c'est-à-dire des intensités supérieures à 10^{12} W/cm^2 environ dans le cadre de l'interaction avec un matériau diélectrique [9]. L'ionisation multi-photonique constitue le premier processus d'ionisation lors de l'interaction. Pour un champ électrique plus intense encore, le potentiel de chacun des électrons est sensiblement affecté. Le bas de la bande de conduction est alors abaissée de manière transitoire avec l'oscillation du champ électrique. La largeur de la bande interdite est alors diminuée. Un électron dont l'énergie est inférieure à la barrière de potentiel peut alors voir sa probabilité de présence non-nulle de l'autre côté de la barrière, cette probabilité suivant typiquement un amortissement exponentiel à l'instar d'une onde évanescente. Cet électron peut alors franchir la bande interdite, c'est l'effet tunnel représenté sur la figure 1.3(b).

Ces deux processus de photoionisation coexistent simultanément, bien que l'un puisse dominer par rapport à l'autre selon les conditions physiques. Ils sont décrits de manière unifiée par le modèle de Keldysh [10]. Ce modèle suppose une longueur d'onde monochromatique du champ appliqué et néglige la structure complexe du matériau. La fonction d'onde de l'électron dans son état initial a la forme de la fonction d'onde de l'état fondamental de l'atome d'hydrogène. Il ne tient compte que de la longueur d'onde laser ω_0, la norme E du champ et la bande interdite W_G du matériau. Au premier abord, le modèle de Keldysh prévoit le même taux de photoionisation pour deux matériaux de même gap, indépendamment de leur structure. La structure de bande complexe est simplifiée à travers la masse effective m_e^* des électrons de conduction se propageant dans le réseau. Cette masse effective caractérise l'effet du potentiel périodique induit par le réseau sur l'électron. Ce dernier est alors traité

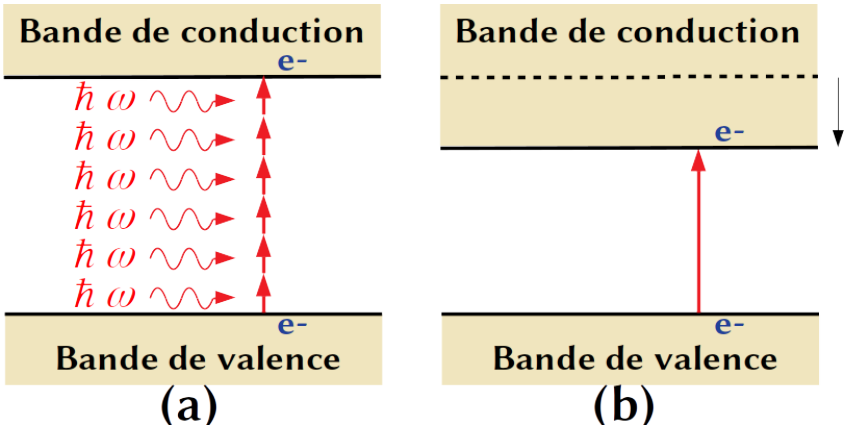

FIGURE 1.3 – Schématisation instantanée du processus de photoionisation ayant lieu au cours de l'interaction laser-diélectrique. (a) Ionisation multiphotonique : plusieurs photons sont simultanément absorbés par l'atome. (b) Ionisation par effet tunnel : la largeur de la bande d'interdite est abaissée par le champ électrique E, permettant la promotion d'un électron vers la bande de conduction par effet tunnel.

comme se déplaçant librement dans le vide, mais avec la masse m_e^*. Sa valeur peut parfois être considérée constante et fixée selon le matériau. Le taux de photoionisation du modèle de Keldysh [10] est donné par la relation suivante :

$$\Omega_{PI}(I) = \frac{2\omega_0}{9\pi}\left(\frac{m_e^*\omega_0}{\hbar\Gamma_2}\right)^{3/2} Q\left(\Gamma, \frac{W_G'}{\hbar\omega_0}\right) \exp\left(-\pi\left\langle\frac{W_G'}{\hbar\omega_0}+1\right\rangle\frac{K_1(\Gamma_2)-K_2(\Gamma_2)}{K_2(\Gamma_1)}\right), \tag{1.1}$$

où

$$\begin{aligned} Q\left(\Gamma, \frac{W_G'}{\hbar\omega_0}\right) =& \sqrt{\frac{\pi}{2K_1(\Gamma_1)}}\sum_{n_{ph}}^{\infty}\exp\left(-\pi\left(n_{ph}-\frac{W_G'}{\hbar\omega_0}+1\right)\frac{K_1(\Gamma_2)-K_2(\Gamma_2)}{K_2(\Gamma_1)}\right) \\ &\times\phi\left(\sqrt{\pi^2\frac{n_{ph}-\frac{W_G'}{\hbar\omega_0}}{2K_1(\Gamma_1)K_2(\Gamma_2)}}\right), \end{aligned} \tag{1.2}$$

avec $\Gamma_1 = 1/\sqrt{1+\Gamma^2}$, $\Gamma_2 = \Gamma/\sqrt{1+\Gamma^2}$ et $W_G' = 2W_G K_2(\Gamma_1)/\pi\Gamma_2$ la bande interdite effective. Les crochets $\langle\rangle$ symbolisent la partie entière. Les fonction K_1 et K_2 sont respectivement les fonctions elliptiques de première et seconde espèces. La fonction ϕ est la fonction de Dawson. Ces fonctions spéciales sont décrites dans l'Annexe A. Le modèle de Keldysh introduit un paramètre Γ, appelé paramètre de Keldysh :

$$\Gamma = \frac{\omega_0\sqrt{m_e^* W_G}}{eE}. \tag{1.3}$$

Ce paramètre est lié au rapport entre le gap W_G du matériau et l'énergie pondéromotrice

W_p d'un électron, c'est-à-dire son énergie d'oscillation moyennée sur un cycle optique :

$$W_p = \frac{e^2 E^2}{4 m_e^* \omega_0^2}. \tag{1.4}$$

Le paramètre de Keldysh détermine le régime de photoionisation dominant : l'ionisation multiphotonique si $\Gamma \gg 1$, l'ionisation par effet tunnel si $\Gamma \ll 1$ (voir Fig. 1.3).

La Fig. 1.4 présente le taux de photoionisation dans la silice fondue [11] calculé à partir de l'équation 1.1 en fonction de l'intensité laser I. La longueur d'onde est de 800 nm, la bande interdite $W_G = 9$ eV et la masse effective est choisie comme la masse de l'électron libre $m_e^* = m_e$. L'augmentation d'un ordre de grandeur de l'intensité laser conduit à une augmentation de plusieurs ordres de grandeurs du taux de photoionisation. Aux alentours de certaines intensités, on observe une brève diminution du taux de photoionisation avec l'augmentation de l'intensité, suivie d'une pente plus faible. Cela provient de l'augmentation du gap effectif, entraînant un saut dans l'ordre multiphotonique.

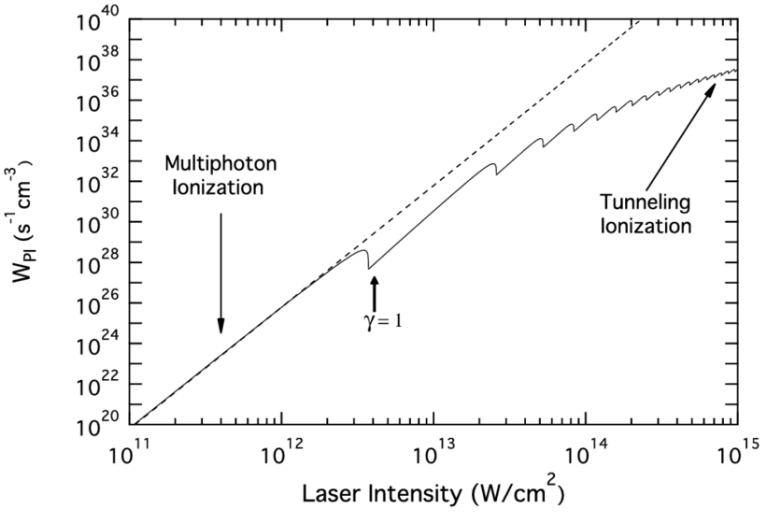

FIGURE 1.4 – Taux de photoionisation en fonction de l'intensité laser, obtenu avec le modèle de Keldysh dans la silice fondue ($W_G = 9$ eV), pour une longueur d'onde de 800 nm et pour $m_e^* = m_e$ [11]. La ligne pointillée correspond au taux d'ionisation $\sigma_6 I^6$.

Une limitation importante du modèle de Keldysh est l'hypothèse de monochromaticité de l'impulsion laser. Cette hypothèse n'est pas vérifiée dans certains cas. Par exemple, lors de la propagation dans des cristaux non-linéaires, l'impulsion peut subir une conversion en fréquences au cours de la propagation [12]. Dans la silice, la dispersion temporelle ou une impulsion présentant des couplages spatio-temporels peuvent faire varier la longueur d'onde de manière significative, et donc l'ordre multiphotonique dans le modèle de Keldysh. En toute rigueur, il conviendra de vérifier que ces variations de longueur d'onde sont suffisamment faibles pour assurer sa validité. Bien que le modèle de Keldysh soit largement répandu, notons que d'autres modèles de photoionisation plus complets existent dans la littérature. C'est le cas du modèle de photoionisation développé par Shcheblanov *et al.* [13], tenant

notamment compte des règles de sélection à basse intensité, de l'effet Stark dynamique, équivalent de l'effet Stark pour un champ oscillant avec des déplacements des niveaux du même ordre que les niveaux d'énergie. Les taux de photoionisation peuvent varier d'un ordre de grandeur comparé au modèle de Keldysh. Les sauts dans l'ordre multiphotonique ne sont pas présents, indiquant qu'ils peuvent relever des propriétés du modèle plutôt que d'une réalité physique.

Pour des intensités modérées, correspondant à un faible paramètre de Keldysh $\Gamma \gg 1$, le taux de photoionisation est proportionnel à I^N :

$$\Omega_{PI}(I) = \sigma_N I^N, \tag{1.5}$$

où σ_N est la section efficace généralisée d'absorption pour N photons. Ce modèle a l'avantage de dépendre simplement du ratio entre le gap du matériau et l'énergie des photons. Selon les auteurs, les valeurs utilisées dans la littérature pour σ_N varient de plusieurs ordres de grandeurs pour un matériau donné, compte tenu des méthodes de mesures très indirectes et des paramètres laser variables. Pour la silice fondue et une longueur d'onde de 800 nm, correspondant à $N = 6$, Grojo *et al.* rapportent [14] $\sigma_6 = 1.82\ 10^{-69}$ cm^{12}J^{-6}s^5, quand Li *et al.* rapportent $\sigma_6 = 1.4\ 10^{-78}$ cm^{12}J^{-6}s^5 [15]. L'écart correspondant est donc de neuf ordre de grandeur. La section efficace généralisée σ_N est évaluée empiriquement sous la forme [16] :

$$\sigma_N \simeq 10^{-19} \times (10^{31\pm2})^{1-N}. \tag{1.6}$$

Le caractère extrêmement approximatif de cette loi est clair, étant donné l'augmentation non-linéaire de l'incertitude avec l'ordre multiphotonique N. Elle ne saurait donc se substituer à des modèles plus élaborés comme le modèle de Keldysh.

1.2.2 Chauffage des électrons de conduction

Les diélectriques excités par laser présentent une densité de charge en bande de conduction, leur conférant des propriétés similaires à celles des métaux. Cette densité de porteurs libres modifie la permittivité diélectrique complexe et donc les propriétés optiques du matériau. Le modèle de Drude, ou modèle de l'électron amorti, permet une description simple de la permittivité en bande de conduction et de la conductivité dans le matériau. Il est couramment utilisé dans l'étude des matériaux diélectriques excités par laser [17]. On s'intéresse ici à l'absorption de l'énergie laser par les électrons de conduction d'après le modèle de Drude, la permittivité sera discuté dans la sous-section 1.3.1.

Soit un électron de charge $-e$ et de masse m_e au sein d'un milieu ionisé soumis à un champ laser oscillant à la pulsation ω_0, soit $\vec{E}(t) = \vec{E}_0 \exp(-i\omega_0 t)$. L'électron subit des collisions avec les autres espèces à une fréquence ν_e. Le modèle de Drude [1] décrit les collisions comme une force de frottement proportionnelle à la vitesse des électrons et la fréquence de collision.

Le principe fondamental de la dynamique appliqué à cet électron s'écrit alors :

$$m_e \frac{d^2\vec{r_e}}{dt^2} = -e\vec{E} - m_e\nu_e\frac{d\vec{r_e}}{dt}, \tag{1.7}$$

avec $\vec{r_e}$ le déplacement de l'électron par rapport à sa position en l'absence de champ. Dans l'équation (1.7), les collisions subies par l'électron sont indépendantes de la densité électronique. En pratique, la fréquence de collision ν_e dépend de nombreux paramètres (cet aspect sera traité plus en détail dans la sous-section 1.2.3), notamment la densité électronique [18], et les températures électronique et du réseau [19]. En toute rigueur, il faut donc noter que ν_e dépend du temps, et que la validité du modèle de Drude tel qu'il est présenté suppose une variation relative lente de la fréquence de collision devant la durée caractéristique de variation du déplacement $\vec{r_e}$, c'est-à-dire $1/\omega_0$.

Les électrons oscillant en phase avec le champ électrique, on peut supposer une solution de la forme $\vec{r_e}(t) = \vec{r_{e0}}\exp(-i\omega_0 t)$. Le déplacement des électrons est alors donné par :

$$\vec{r_e}(t) = \frac{e\vec{E}}{m_e\omega_0^2}\frac{1 - i\nu_e/\omega_0}{1 + \nu_e^2/\omega_0^2}. \tag{1.8}$$

La vitesse $\vec{u_e} = d\vec{r_e}/dt$ de l'électron est alors :

$$\vec{u_e}(t) = -\frac{e\vec{E}}{m_e\omega_0}\frac{\nu_e/\omega_0 + i}{1 + \nu_e^2/\omega_0^2}. \tag{1.9}$$

L'énergie gagnée par l'électron sur une période $T = 2\pi/\omega_0$ du cycle optique peut être obtenue à partir du travail du champ sur un cycle optique. De manière équivalente, la variation de la densité d'énergie U_e des électrons est donnée par :

$$\frac{dU_e}{dt} = \left\langle \vec{J_e}\cdot\vec{E} \right\rangle = \frac{1}{2}\mathcal{R}_e\left[\vec{J_e}\cdot\vec{E^*}\right], \tag{1.10}$$

avec $\vec{J_e} = -eN_e\vec{u_e}$ la densité de courant, où N_e est la densité d'électrons de conduction. Les crochets $\langle\rangle$ désignent la valeur moyenne et $\vec{E^*}$ est le complexe conjugué du champ $\vec{E}$. Pour un champ électrique polarisé linéairement on obtient :

$$\frac{dU_e}{dt} = \frac{N_e e^2 E_0^2}{2m_e\nu_e(1 + \omega_0^2/\nu_e^2)}. \tag{1.11}$$

Notons qu'en l'absence de collisions ($\nu_e \to 0$) la variation d'énergie est nulle et les électrons oscillent dans le champ laser sans l'absorber. Les collisions sont donc responsables de l'absorption de l'énergie laser. L'expression (1.11) est liée à une grandeur couramment rencontrée dans la littérature, la section efficace d'absorption σ_{col} du modèle de Drude. Pour des électrons soumis un une intensité laser $I_0 = \epsilon_0 c_0 n_0 E_0^2/2$, avec c_0 la vitesse de la lumière dans le

vide et n_0 l'indice du matériau, on définit la variation de la densité d'énergie absorbée par :

$$\frac{dU_e}{dt} = \sigma_{col} N_e I_0. \tag{1.12}$$

La section efficace d'absorption du modèle de Drude est obtenue par identification :

$$\sigma_{col} = \frac{e^2}{\epsilon_0 n_0 c_0 m_e \nu_e (1 + \omega_0^2/\nu_e^2)}. \tag{1.13}$$

La paramètre déterminant pour la section efficace d'absorption est le rapport entre la fréquence laser et la fréquence de collision. La figure 1.5 présente l'évolution de σ_{col} en fonction de la fréquence de collision ν_e pour une longueur d'onde $\lambda_0 = 800$ nm dans la silice fondue ($n_0 = 1.45$), où l'on a considérée un intervalle typique pour la fréquence de collision [19]. Elle atteint un maximum pour $\nu_e = \omega_0$.

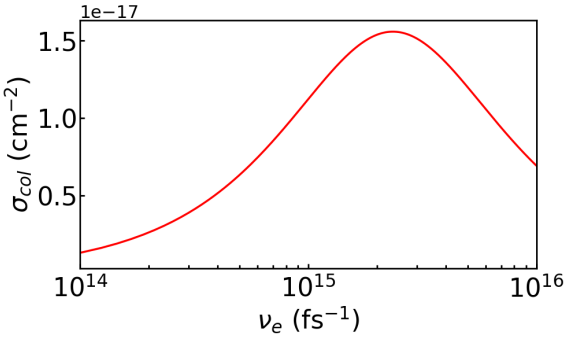

FIGURE 1.5 – Section efficace d'absorption donnée par le modèle de Drude pour une longueur d'onde $\lambda_0 = 800$ nm ($\omega_0 = 2.35$ fs^{-1}) en fonction de la fréquence de collision.

1.2.3 Description des collisions

Le calcul de l'absorption de l'énergie laser par le modèle de Drude, réalisé dans la sous-section 1.2.2, implique d'évaluer la fréquence effective de collision des électrons ν_e. De manière générale, on considère quatre espèces pour les collisions avec les électrons [20] : les phonons, les électrons, les neutres, et les ions, correspondants aux fréquences ν_{e-ph}, ν_{e-e}, ν_{e-n} et ν_{e-i}. La fréquence de collision dans les diélectriques est de l'ordre de 1 fs^{-1} [5, 19, 21]. Pour une température électronique inférieure à l'énergie de Fermi W_F, la fréquence de collision électron-phonon est la composante dominante, ce qui est attendu pour une excitation laser et une densité électronique modérée [20]. De manière générale, la fréquence de collision dépend en particulier de la densité et de l'énergie des électrons et des atomes, ainsi que du degré d'ionisation.

On s'intéresse dans un premier temps à la contribution des fréquences ν_{e-i}, ν_{e-e} et ν_{e-n}. Les collisions électron-ion ont lieu, par définition, lorsque les atomes du solides sont ionisés. Pour des intensités laser modérées, la densité électronique n'excède pas la densité critique

(le champ laser n'est pas écranté par la densité d'électrons libres), qui est typiquement d'un ordre de grandeur inférieure à la densité électronique en bande de valence pour la silice. Le degré d'ionisation du plasma est donc très faible et seule une fraction des atomes est ionisée ($Z \ll 1$)), conduisant à une contribution largement négligeable de ce processus. Les collisions électrons-neutres doivent être considérés seulement pour des niveaux d'excitation intermédiaires, avant que tous les atomes ne soient ionisés et lorsque les liaisons solides sont affaiblies. Cela implique une disparation de la périodicité du matériau, qui n'apparaît que si la température de fusion du matériau est dépassée. Elle est de la forme $\nu_{e-n} = N_n \sigma_{at} \sqrt{k_B T_e / m_e}$ [20, 22], avec N_n la densité d'espèces neutres, σ_{at} la section efficace d'interaction (typiquement donnée par la taille d'un atome), et T_e la température électronique. Elle est de l'ordre de 1 fs^{-1} [20]. Les collisions électron-électron peuvent être modélisées en supposant un gaz d'électrons dégénéré. La fréquence correspondante est de la forme $\nu_{e-e} \propto T_e^2 / W_F$ [1, 23], et reste très faible pour des températures et densités électroniques modérées.

Au sein du réseau atomique constituant les solides, on distingue les phonons acoustiques et les phonons optiques. Les phonons acoustiques peuvent être assimilés à des ondes acoustiques classiques, et sont dominants dans les matériaux métalliques. Les phonons optiques sont présents dans les solides présentant plusieurs atomes par maille, et notamment les matériaux cristallins comportant des ions chargés positivement et négativement. Ces phonons correspondent à des modes de vibrations pour lesquelles les ions positifs et négatifs oscillent en opposition de phase, créant un moment dipolaire et donc une polarisation macroscopique du milieu. L'absorption d'énergie laser par le réseau apparaît lorsque les électrons oscillants dans le champ laser sont diffusés par les vibrations du réseaux, c'est-à-dire les phonons. À la diffusion des électrons peut être attribuée une fréquence de collision effective, entrant en jeu dans la conductivité, la diffusion de la chaleur et le coefficient d'absorption [9].

Notons que dans un solide comme la silice, la prépondérance des interactions des électrons avec les phonons acoustique ou optique dépend fortement de l'énergie des électrons. Arnold *et al.* ont calculé la fréquence de collision électron-phonon dans la silice à 300 K en fonction de l'énergie électronique, présentée dans la figure 1.6. On note que pour une énergie au-delà de 5 eV, cette fréquence de collision varie peu avec la température électronique. Pour ces énergies électroniques, la fréquence de collision dominante à 300 K est la collision avec les phonons acoustiques, supérieure d'un facteur 50 environ à la contribution des phonons optiques. Pour une énergie de 2 à 3 eV, leur contribution est similaire.

A basse température du réseau, la fréquence de collision avec les phonons acoustiques évolue linéairement avec la température du réseau. Pour les phonons optiques longitudinaux d'énergie $\hbar\omega_{LO}$, la dépendance de la fréquence de collision à la température suit une distribution de Bose-Einstein de la forme $1/\exp(\hbar\omega_{LO}/k_B T_l - 1)$ [22]. Pour des électrons à basse température (2 à 3 eV), le chauffage du réseau accroît la prépondérance des phonons optiques pour ν_e. Ceci est d'autant plus vrai lorsque la température de fusion est dépassée, auquel cas les phonons acoustiques disparaissent avec les liaisons solides.

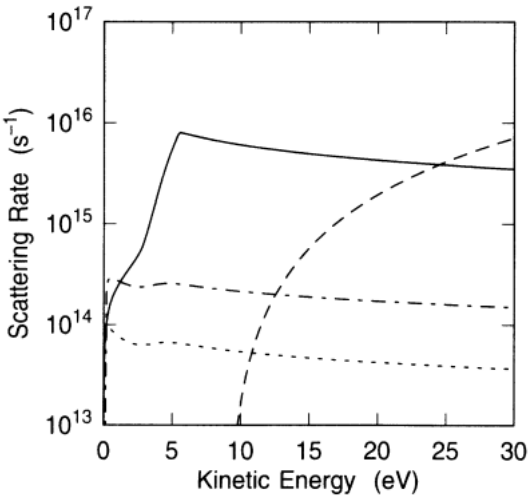

FIGURE 1.6 – Fréquence de collision électron-phonon dans la silice à 300 K en fonction de l'énergie cinétique des électrons. La courbe solide correspond aux phonon acoustiques, la courbe en tirets correspond à l'ionisation par impact, la courbe en tiret-pointillés aux phonons optiques à 153 meV, la courbe en pointillés aux phonons à 63 meV. Figure tirée de [19].

Dans certains travaux étudiant la silice, on considère uniquement la contribution des phonons acoustiques à la fréquence de collision effective [18]. Comme nous venons de le voir, cette approximation est globalement valide pour des températures électroniques supérieures à 5 eV et des températures du réseau modérées. Ce modèle correspond à un état de la matière qualifié de froid et solide [20]. La pente associée à cette dépendance linéaire diffère selon les auteurs, mais la fréquence est généralement comprise entre 1 fs^{-1} et 10 f^{-1}. Il semble toutefois que les phonons optiques soient à privilégier pour des faibles températures électroniques et les hautes températures du réseau. Suivant Balling *et al.* [20], il est clair que la fréquence de collision dominante est la fréquence de collision électron-phonon pour un état de la matière dit "froid et solide", initié par une excitation laser modérée. On retiendra que la fréquence de collision effective peut s'écrire $\nu_e = \nu_{e-p}$ dans le cadre de la structuration de matériaux.

1.2.4 Ionisation par impact

Comme présenté dans la sous-section 1.2.2, les électrons promus en bande de conduction peuvent absorber l'énergie laser et acquérir une énergie suffisante pour porter un électron depuis la bande de valence vers la bande de conduction par collision. Pour des raisons de conservation, un électron en bande de conduction ne peut absorber un photon par un processus à deux corps électron-photon, l'impulsion et l'énergie totales du système ne pouvant être conservées simultanément. Un troisième corps est nécessaire, et l'absorption se produit par collision électron-phonon-photon [24] ou bien électron-noyau-photon (Bremsstrahlung inverse) [25], si le degré d'ionisation du matériau est suffisant [26].

Afin d'ioniser à leur tour les électrons de valence, les électrons de conduction doivent acquérir

une énergie critique permettant la conservation de l'impulsion et de l'énergie du système. En considérant un électron de conduction et un électron de valence de même masse effective, cette énergie vaut $3W_G/2$ [27]. Notons également que puisque les électrons de conduction oscillent dans le champ laser, l'énergie d'oscillation correspondante doit être ajouté au gap du matériau lorsque l'on considère la promotion d'un électron depuis la bande de valence vers la bande de conduction. Cette énergie correspondant à l'énergie pondéromotrice W_p pour une amplitude E et une pulsation ω_0 du champ (Eq. (1.4)), le gap effectif W'_G est :

$$W'_G = W_G + \frac{e^2E^2}{4m_e\omega_0^2}, \tag{1.14}$$

qui correspond au gap effectif du modèle de Keldysh pour un paramètre de Keldysh $\Gamma \gg 1$ (Eq. (1.3)). Les électrons redescendent ensuite à un niveau d'énergie plus bas dans la bande de conduction. Si ce processus est répété à de nombreuses reprise, les électrons issus de l'ionisation par impact seront eux-mêmes chauffés et ioniseront à leur tour d'autres électrons. La production d'électrons devient alors exponentielle et on parle d'avalanche électronique. Notons que, selon l'intensité laser, le chauffage d'un électron à une énergie de quelques eV

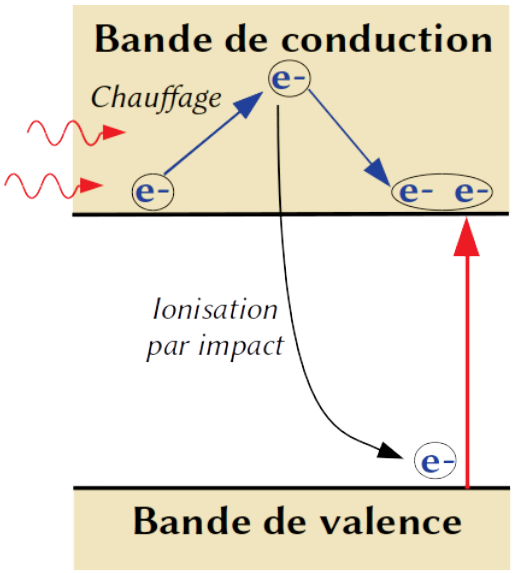

FIGURE 1.7 – Illustration de l'ionisation par impact.

peut nécessiter plusieurs cycles optiques. Le phénomène d'avalanche nécessite lui-même que l'électron chauffe puis perde son énergie à plusieurs reprises. Selon l'intensité laser, la prépondérance de l'ionisation par impact devant la photoionisation requiert donc en général des impulsions suffisamment longues. Par exemple, dans la silice et pour des intensités laser d'intensité $10^{14}\mathrm{W/cm^2}$, Shcheblanov et al. montrent via un modèle cinétique basé sur l'équation de transport de Boltzmann que l'ionisation par impact est négligeable pour des durées d'impulsion inférieure à 200 fs [28]. Des conclusions similaires sont avancées par Rethfeld [29], pour des durées plutôt de l'ordre de 100 fs.

D'une manière générale, le taux d'ionisation par impact pour une population d'électrons décrits par une fonction de distribution $f(W_e)$ est obtenu en sommant les contributions de chaque électron d'énergie W_e [6] :

$$\Omega_{IPI}(t) = \int_0^\infty \nu_0(W_e) f(W_e, t) dW_e, \tag{1.15}$$

où $\nu_0(W_e)$ est la fréquence de collision pour l'énergie W_e. La fonction de distribution considérée joue un rôle déterminant sur le taux d'ionisation par impact.

Modèle de Stuart *et al.*

Un modèle couramment utilisé d'ionisation par impact a été développé par Stuart *et al.* [6]. En partant de l'équation de Fokker-Planck pour la fonction de distribution des électrons, il inclut le chauffage des électrons sous le champ laser, le transfert d'énergie vers le réseau à travers les collisions électron-phonon, ainsi que la diffusion des électrons. La propagation laser est modélisée par une équation de continuité (loi de Beer-Lambert), où seule l'absorption de l'énergie par les électrons de conduction laser est considérée. La densité d'électrons est supposée exponentielle avec la durée. Le taux d'ionisation par impact obtenu est finalement proportionnelle à l'intensité et à la densité électronique en bande de conduction :

$$\Omega_{IPI}(t) = \alpha N_e(t) I(t), \tag{1.16}$$

où α est le coefficient d'ionisation par impact, exprimé en cm^2/J, et dépend du matériau considéré, de la durée de l'impulsion laser et de sa longueur d'onde. Dans ce modèle, il est indépendant de l'énergie des électrons et correspond donc à une valeur moyenne.

La valeur de ce paramètre est généralement déterminée expérimentalement en considérant la fluence seuil d'endommagement [15, 30, 31]. Pour la silice fondue, différentes valeurs sont avancées expérimentalement, 4 cm^2/J [31], 9 cm^2/J [15], 11 cm^2/J [30]. Pour des impulsions d'une durée de 90 fs, Wu *et al.* suggèrent que la valeur de 4 cm^2/J pourrait être surestimée d'un facteur 50, et obtiennent une valeur comprise entre 0.14 et 0.31 cm^2/J. Les auteurs notent que le taux de photoionisation conduisant à $\alpha \geq 4$ cm^2/J est sensiblement inférieur à celui donné par le modèle de Keldysh. La photoionisation serait alors sous-estimée et l'ionisation par impact surestimée [21]. On retiendra que la valeur de ce paramètre est difficilement quantifiable compte tenu des méthodes de mesures qui doivent supposer la validité du modèle d'ionisation multiphotonique et des paramètres associés, ainsi que de la forte non-linéarité de l'interaction.

Une méthode théorique courante pour approcher le coefficient d'ionisation par impact repose sur le modèle de Drude [1], caractérisant notamment l'absorption de l'énergie laser par les électrons de conduction. Le paramètre α peut donc être évalué par un modèle simple présenté dans les références [5, 6]. Cette méthode a l'avantage de tenir compte directement de la largeur de la bande interdite et également de la fréquence de collisions. En utilisant ce

modèle, le coefficient d'ionisation par impact s'écrit :

$$\alpha = \frac{\sigma_{col}}{3W'_G/2}, \tag{1.17}$$

avec σ_{col} la section efficace d'absorption donnée par le modèle de Drude (voir l'Eq. 1.13). Dans le cas de la silice fondue pù $W_G = 9$ eV, et avec $\sigma \simeq 10^{-17}$ cm^2 (obtenue pour une longueur d'onde $\lambda_0 = 800$ nm et une fréquence de collision $\nu_e \sim 1$ fs^{-1}), on obtient $\alpha = 6.9$ cm^2/J, ce qui est de l'ordre des valeurs avancées dans les références [15, 30, 31].

Modèle de Peñano *et al.*

Dans le modèle qui vient d'être présenté, la distribution en énergie des électrons n'est pas prise en compte. Peñano *et al.* [32] propose une distribution en énergie Maxwellienne afin de décrire les électrons de conduction comme un gaz non dégénéré :

$$f(W_e) = 2\left(\frac{W_e}{\pi W_{th}^3}\right)\exp(-W_e^2/W_{th}), \tag{1.18}$$

où $v_{th} = 3k_B m_e T_e$ est la vitesse thermique électronique. La fréquence de collision pour l'énergie W_e est donnée par $\nu_0 = \alpha_0(W_e/W_G - 1)^2$ pour $W_e \geq W_G$, et s'annule pour $W_e < W_G$ [10]. Le paramètre α_0 est déterminé empiriquement pour un matériau donné et a la dimension d'une fréquence ($\alpha_0 = 1.5$ fs^{-1} dans la silice [6]). Le taux d'ionisation par impact est finalement :

$$\Omega_{IPI} = N_e \frac{2\alpha_0}{\sqrt{\pi}}\left[\left(\frac{15}{4}\beta^{3/2} - \frac{1}{2}\beta^{1/2}\right)e^{-1/\beta} + \frac{\sqrt{\pi}}{2}\left(\frac{15}{4}\beta^2 - 3\beta + 1\right)erfc\left(\frac{1}{\sqrt{\beta}}\right)\right], \tag{1.19}$$

où $\beta = W_e/(3W'_G/2)$ est l'énergie électronique normalisée. La fonction :

$$erfc(x) = 1 - \left(\frac{2}{\sqrt{\pi}}\right)\int_0^x \exp(-t^2)dt, \tag{1.20}$$

est la fonction erreur complémentaire. Puisque une distribution en énergie des électrons est considérée dans ce modèle, seuls les électrons ayant une énergie suffisante ($W_e \geq 3/2W'_G$) pourront ioniser de nouveaux électrons.

En vue de comparer les modèles de Stuart et de Peñano, on considère une longueur d'onde $\lambda_0 = 800$ nm. Les évolutions de la densité N_e et la densité d'énergie U_e sont respectivement données par :

$$\frac{\partial N_e}{\partial t} = (\sigma_6 I^6 + \Omega_{IPI})\frac{N_v - N_e}{N_v}, \tag{1.21}$$

$$\frac{\partial U_e}{\partial t} = \sigma_{col} I N_e - \frac{3}{2}\Omega_{IPI} W'_G \frac{N_v - N_e}{N_v}, \tag{1.22}$$

avec $\sigma_6 = 5.68\ 10^{-68}$ m^{-3}s^{-1}(m^2/W)$^{-6}$ la section efficace généralisé d'ionisation multiphoto-

nique pour la silice [21] et N_v la densité initiale d'électrons en bande de valence. La densité en bande de conduction inclut l'ionisation multiphotonique et l'ionisation par impact. La densité d'énergie tient compte du chauffage laser et du refroidissement des électrons lors de l'ionisation par impact. La section efficace $\sigma_{col} = 1.5\ 10^{-17}\ \text{cm}^{-2}$ est déterminée pour $n_0 = 1.45$ et $\nu_e = 3\ \text{fs}^{-1}$. Le coefficient d'ionisation par impact $\alpha = 6.7\ \text{cm}^2/\text{J}$ est donné par l'équation (1.17).

La figure 1.8 présente les évolutions du taux d'ionisation par impact, de la densité en bande de conduction, et de la densité d'énergie électronique en utilisant le modèle de Peñano et le modèle de Stuart. On considère une durée de 150 fs (largeur à mi-hauteur), $\lambda_0 = 800$ nm, et des intensités laser de 13 TW/cm^2 (a)-(c), et 15 TW/cm^2 (e)-(f). Le modèle de Peñano conduit à un taux d'ionisation par impact plus faible, avec une diminution plus lente après le maximum puisque ce taux est lié à l'énergie électronique et non pas directement à l'intensité laser. La densité électronique est par conséquent également plus faible. L'augmentation de l'intensité laser tend à réduire ces écarts relatifs. La densité d'énergie électronique est plus faible en utilisant le modèle de Peñano, ce qui provient de la plus faible densité électronique et donc d'un plus faible chauffage. Une intensité plus élevée augmente l'écart relatif entre les densités d'énergie électroniques, ce qui traduit le fait que seuls les électrons de plus haute énergie contribue à l'ionisation par impact dans le modèle de Peñano. Dans le modèle de Stuart, l'augmentation de l'intensité laser entraîne augmentation très importante de la densité d'énergie électronique, là où cet effet est contrebalancé par l'ionisation dans le modèle de Penñano. Ce dernier permet donc une évaluation plus réaliste de l'ionisation par impact via sa dépendance à la température électronique.

1.2.5 Relaxation électronique et formation des défauts

Relaxation électronique

Lorsque les électrons sont promus en bande de conduction, ils gagnent de l'énergie par chauffage laser, et en perdent à travers l'ionisation collisionnelle et le transfert d'énergie vers le réseau. En retombant ainsi à un plus faible niveau d'énergie dans la bande de conduction, la probabilité de recombiner augmente. On distingue trois mécanismes de recombinaison. Le premier est la recombinaison radiative dans laquelle un électron de la bande de conduction interagit avec un trou et regagne la bande de valence en émettant un photon d'énergie égale à l'énergie de l'électron. Le second est la recombinaison non-radiative parfois appelée recombinaison Auger (ce processus est plus important dans les semi-conducteurs et n'est généralement pas considéré dans les diélectriques) où l'électron en bande de conduction recombine tout en entrant en collision avec un autre électron de conduction. L'énergie issue de la recombinaison est transférée au second électron. C'est le processus inverse de l'ionisation par impact. Le troisième mécanisme est le piégeage d'un électron de conduction au cours duquel l'électron de conduction s'associe à un trou de la bande de valence. Le système électron-trou, appelé exciton auto piégé (*self trapped exciton* ou STE), constitue alors un

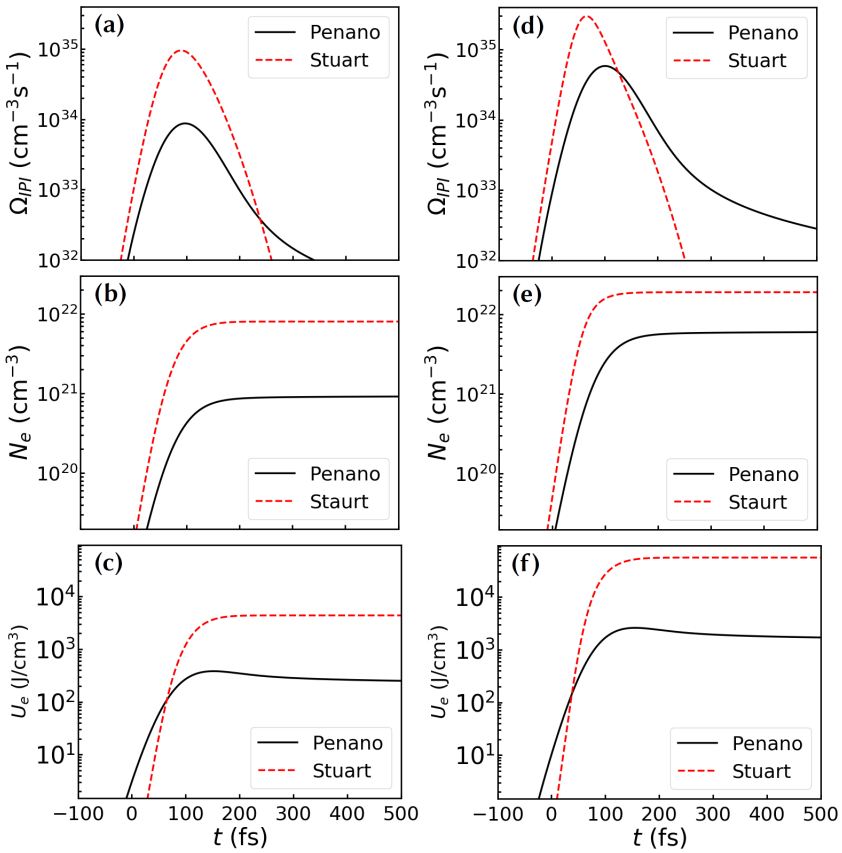

FIGURE 1.8 – Évolution du taux d'ionisation par impact ((a) et (d)), de la densité électronique en bande de conduction ((b) et (e)) et de la densité d'énergie électronique ((c) et (f)) obtenues à partir des modèles de Stuart et de Peñano. Les intensités laser sont 13 TW/cm^2 ((a)-(c)) et 15 TW/cm^2 ((d)-(f)).

niveau supplémentaire dans la bande interdite (défaut). Cet état est transitoire et peut relaxer soit vers la bande de conduction, soit vers la bande de valence, soit vers un défaut permanent (modification structurelle du matériau).

Dans la littérature, on attribue généralement au temps de relaxation une valeur effective τ_r pour un matériau donné, incluant de manière indifférenciée l'ensemble des processus. Dans la silice, la valeur choisie est égale au temps de formation des STE [5, 14]. Cette durée caractéristique de relaxation τ_r dépend de la relaxation considérée, de l'énergie et la densité électronique, et également du matériau. Guizard *et al.* [33] rapportent une durée de piégeage de 150 fs dans la silice. En négligeant la contribution des défauts dans la production de porteurs en bande de conduction, l'évolution de la densité d'électrons en bande de conduction N_e est donnée par l'équation suivante [5] :

$$\frac{\partial N_e}{\partial t} = \left(\Omega_{PI}(I) + \Omega_{IPI}(I)\right) \frac{N_v - N_e}{N_v} - \frac{N_e}{\tau_r}, \tag{1.23}$$

où N_v est la densité électronique en bande de valence. Dans l'équation (1.23), les taux de photoionisation et d'ionisation par impact sont pondérés par la densité électronique disponible

en bande de valence.

Défauts transitoires et permanents

De manière générale, on qualifie de défaut une modification de l'état du matériau affectant ses propriétés optiques et donc l'interaction avec l'impulsion laser. Ces modifications peuvent être transitoires, comme pour les excitons auto-piégés [14] (STE), ou permanentes dans le cas d'une réorganisation structurelle du matériau [34]. Dans les deux cas, ils induisent l'apparition de niveaux supplémentaires au sein de la bande interdite. Ces défauts jouent un rôle dans la fonction diélectrique, et contribuent au peuplement de la bande de conduction. Il modifient le seuil d'endommagement du matériau [14], et ont donc une importance particulière en régime multi-impulsionnel. Décrivons dans un premier temps la nature et l'origine de ces défauts.

La structure des STE a été décrite théoriquement par des calculs *ab initio* à travers la méthode de Hartree-Fock [35]. Leur origine est attribuée à la présence d'un trou dans la bande de valence d'un atome d'oxygène entraînant le déplacement de cet atome par rapport au réseau, ainsi qu'un élargissement du puits de potentiel autour du porteur de charge. Cet élargissement du potentiel est à l'origine du piégeage de l'électron correspondant à ce trou : l'électron recombine vers un état STE, une paire électron-trou solidaire d'un site du réseau. Il est donc piégé et localisé. Ces défauts sont créés avec une durée caractéristique correspondant au temps de recombinaison, 150 fs dans la silice [14]. Leur durée de vie est bien plus longue, autour de 400 ps [14, 36, 37] et leur énergie par rapport à la bande de valence est proche de 3 eV [14, 38].

Une large variété de défauts permanents peuvent apparaître suite à ce processus. La silice est de ce point de vue particulièrement documentée et permet d'illustrer la dynamique de formation des défauts. Dans le cas du quartz (forme cristalline de la silice), le déplacement de l'atome lié à la présence d'un trou affaiblit sa liaison avec le réseau, et peut mener à la formation d'un atome de silicium associé à une paire électron-trou, appelé centre E', et à un oxygène possédant un électron de valence non apparié, appelé *nonbridging oxygen hole centers* (NBOHC) [37]. Ces modifications structurelles permanentes sont les plus couramment étudiées dans le quartz.

Les électrons dans les niveaux induits par les STE et défauts permanents peuvent eux-mêmes être excités vers la bande de conduction. Plusieurs modèles sont proposés pour intégrer ces états intermédiaires dans l'évolution de la densité électronique, reposant sur des hypothèses différentes. Dans le cas de la silice et pour une longueur d'onde $\lambda_0 = 800$ nm, Grojo *et al.* ajoutent la contribution des STE issus de l'ionisation multiphotonique à l'équation (1.23) pour décrire l'évolution de la densité en la bande de conduction :

$$\frac{\partial N_e}{\partial t} = \sigma_4' I^4 N_{STE} + \sigma_6 I^6 + \alpha N_e I, \tag{1.24}$$

où σ_4' est la section efficace généralisée individuelle pour la création de STE (le symbole prime

la distingue de la section efficace généralisée σ_4), N_{STE} est la densité de STE. Le niveau des STE étant situé à 6 eV de la bande de conduction, quatre photons sont nécessaire pour la promotion de ces électrons. Zhukov *et al.* utilisent un modèle similaire [38].

Un autre modèle incluant les STE est proposé par Wang *et al.* [39]. Trois facteurs contribuent à l'évolution de la densité électronique en bande de conduction : l'ionisation des électrons de valence, pondérée par la densité d'électrons disponibles en bande de valence, la promotion des excitons auto-piégés vers la bande de conduction, et la recombinaison des électrons de conduction :

$$\frac{\partial N_e}{\partial t} = \frac{N_v - N_e - N_{STE}}{N_v} \left[\Omega_{IPI} + \Omega_{PI}\right]_{W=W_G} + \frac{N_{STE}}{N_a} \left[\Omega_{IPI} + \Omega_{PI}\right]_{W=W_{STE}} - \frac{N_e}{\tau_r}, \quad (1.25)$$

avec W_{STE} l'énergie des STE par rapport à la bande de valence, et W_G l'énergie du gap. La densité de saturation pour les STE est ici la densité atomique N_a. A la différence du modèle précédent, les STE peuvent être excités par ionisation par impact, et l'on tient compte de la recombinaison.

La densité d'évolution des états STE considère également trois contributions : la recombinaison des électrons de conduction vers les STE, la dépopulation des STE par excitation vers la bande de conduction, incluant notamment l'ionisation par impact, et la dépopulation des STE vers la bande de valence avec un temps τ_s :

$$\frac{\partial N_{STE}}{\partial t} = \frac{N_e}{\tau_r} - \frac{N_{STE}}{N_a} \left[W_{IPI} + \Omega_{PI}\right]_{W=W_{STE}} - \frac{N_{STE}}{\tau_s}. \quad (1.26)$$

1.2.6 Modèle à deux températures

On présente ici le modèle à deux températures décrivant l'évolution de l'énergie des deux sous-systèmes électronique et ionique. Il s'agit d'un modèle fluide, ce qui implique que la durée de l'impulsion doit être suffisamment longue (quelques dizaines de fs [40]) pour que l'équilibre s'établisse et ainsi définir une température électronique. L'absorption de l'énergie laser par les électrons de conduction est assurée par l'interaction électron-phonon décrite précédemment. Les électrons interagissent avec les phonons sur une durée caractéristique de l'ordre de la femtoseconde. Cependant, afin que s'opère un transfert d'énergie significatif entre le système électronique et le système ionique, conduisant à un chauffage du réseau, il est nécessaire que plusieurs interactions aient lieu, du fait de la différence de masse entre électron et phonon. Plusieurs collisions doivent donc avoir lieu pour qu'un électron transfère toute son énergie au réseau. La durée typique d'échange d'énergie entre les deux sous-systèmes est donc de l'ordre de la picoseconde [41].

L'échange d'énergie entre les sous-systèmes électronique et atomique est très souvent approché par un modèle à deux températures [18, 42, 41]. Il consiste en un modèle de diffusion de la chaleur pour chacun des sous-systèmes, auquel s'ajoute un terme d'échange d'énergie des électrons vers le réseau, avec un durée caractéristique de l'ordre de la picoseconde. L'évolution

de la densité d'énergie électronique correspond à la somme des gains et des pertes :

$$\frac{\partial U_e}{\partial t} = \left(\frac{\partial U_e}{\partial t}\right)_{gain} - \left(\frac{\partial U_e}{\partial t}\right)_{pertes}. \tag{1.27}$$

Où le gain correspond à la densité d'énergie laser absorbée donnée par le modèle de Drude (voir la sous-section 1.2.2) :

$$\left(\frac{\partial U_e}{\partial t}\right)_{gain} = \sigma_{col} N_e I. \tag{1.28}$$

Les pertes correspondent à l'énergie perdue par les électrons lors de l'ionisation par impact (voir la sous-section 1.2.4) et l'énergie transférée au réseau :

$$\left(\frac{\partial U_e}{\partial t}\right)_{pertes} = \frac{3}{2}\Omega_{IPI} W'_G + \left(U_e - \frac{C_{ve}}{C_{vl}} U_l\right)/\tau_{el}, \tag{1.29}$$

avec U_l la densité d'énergie du réseau, $C_{ve} = 3/2 k_B N_e$ (distribution de Maxwell-Boltzmann) et C_{vl} sont respectivement les capacités calorifiques volumiques des électrons et du réseau ($\mathrm{J/K/m^3}$), et τ_{el} la durée caractéristique de relaxation électron-réseau [43]. L' équation (1.28) suppose que les électrons issus de l'ionisation multiphotonique sont créés avec une énergie interne nulle et néglige la diffusion des électrons (hypothèse discutée par la suite). L'équation (1.29) suppose que les électrons qui recombinent ont une énergie cinétique nulle. En considérant par ailleurs une recombinaison électronique radiative, la variation d'énergie du réseau est uniquement liée à l'énergie électronique. Les évolutions des densités d'énergies s'écrivent finalement :

$$\frac{\partial U_e}{\partial t} = \sigma_{col} N_e I - \frac{3}{2}\Omega_{IPI} W'_G - \left(U_e - \frac{C_{ve}}{C_{vl}} U_l\right)/\tau_{el}, \tag{1.30}$$

$$\frac{\partial U_l}{\partial t} = \left(U_e - \frac{C_{ve}}{C_{vl}} U_l\right)/\tau_{el}. \tag{1.31}$$

On peut écrire ce modèle en fonction des températures $T_e = U_e/C_{ve}$ et $T_l = U_l/C_{vl}$ en incluant la diffusion de la chaleur :

$$C_{ve}(T_e)\frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla \cdot (\kappa_e(T_e)\nabla T_e) - \gamma_{el}(T_e - T_l) + \sigma_{col} N_e I - \frac{3}{2}\Omega_{IPI} W'_G - T_e \frac{\partial C_{ve}}{\partial t}, \tag{1.32}$$

$$C_{vl}(T_l)\frac{\partial T_l}{\partial t} = \nabla \cdot (\kappa_l(T_l)\nabla T_l) + \gamma_{el}(T_e - T_l), \tag{1.33}$$

avec γ_{el} le couplage électron-réseau, κ_e et κ_l les conductivités thermiques des électrons et du réseau (en $\mathrm{J/s/m/K}$). Le dernier terme de l'équation rend compte de la variation de la température électronique liée à variation de la densité d'électrons de conduction. Notons que les capacités calorifiques des électrons et du réseau, ainsi que le taux d'échange sont dépendants de la température. La figure 1.9 présente l'évolution typique de la température du réseau et de la température électronique. Les électrons sont chauffés par le laser, et transfèrent leur énergie au réseau tant que $T_e > T_l$. Les deux sous-systèmes atteignent

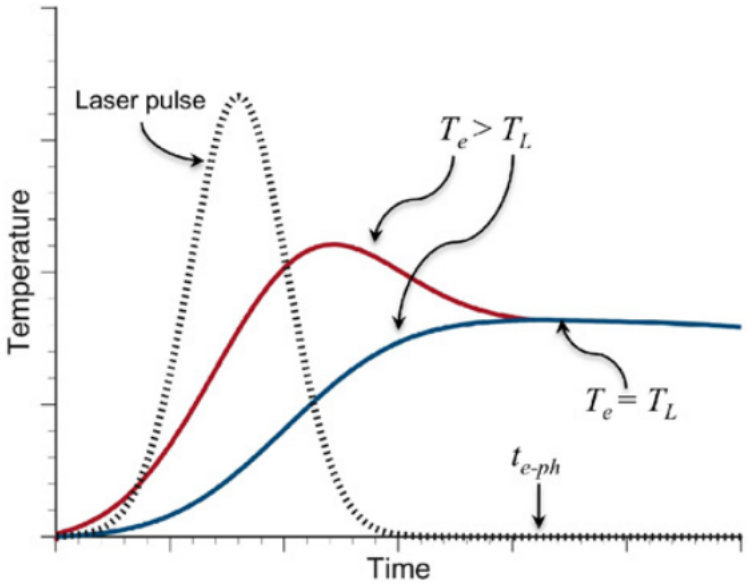

FIGURE 1.9 – Illustration de l'évolution temporelle des températures électronique et du réseau. La durée t_{e-ph} nécessaire pour atteindre l'équilibre entre les deux sous-systèmes dépend de l'excitation laser, et est de l'ordre de quelques piscosecondes [9].

l'équilibre après quelques picosecondes.

La capacité calorifique $C_{vl}(T_l)$ du réseau en fonction de la température peut être calculée par le modèle de Debye [1]. A haute température ($T > T_D$) en phase solide, cette dépendance disparaît, la capacité calorifique se réduit à une constante donnée par la loi de Dulong et Petit [44]. La conductivité thermique $\kappa_l(T_l)$ pour la silice fondue reste globalement constante pour des températures jusqu'à 2000 K [45]. Le terme de couplage γ_{el} dépend de la densité et la température électronique, ainsi que de la fréquence de collision [18]. On peut négliger sa dépendance à ces deux derniers paramètres en introduisant une durée caractéristique de relaxation électron-réseau τ_{el}, on a alors : $\gamma_{el} = 3N_e k_B/(2\tau_{el})$.

Les électrons sont décrits par la statistique de Fermi-Dirac qui tient compte du spin des particules. Si l'on néglige la contribution des électrons de plus faible énergie, cette distribution tend vers une distribution de Maxwell-Boltzmann. La capacité calorifique des électrons en bande de conduction peut donc être évaluée comme celle d'un gaz d'électrons idéal de densité N_e, soit :

$$C_{ve} = \frac{3}{2} N_e k_B, \tag{1.34}$$

Cela permet d'évaluer la conductivité thermique d'après le modèle de Drude :

$$\kappa_e = \frac{1}{3} u_e^2 C_{ve}/\nu_e = \frac{1}{2} k_B m_e u_e^2 N_e/\nu_e, \tag{1.35}$$

avec u_e la vitesse des électrons. La diffusivité thermique $\lambda_e = \kappa_e / C_{ve}$ est alors :

$$\lambda_e = \frac{1}{3} u_e^2 \nu_e \tag{1.36}$$

Selon le régime d'interaction, le modèle à deux températures peut être simplifié. En considérant une température électronique de quelques eV et $\nu_e \simeq 10^{15}$ s^{-1}, on obtient $\lambda_e \simeq 10^{-5}$ $cm^2 s^{-1}$. La longueur de diffusion pour les électrons atteint quelques microns en une durée $\Delta t = 1$ μs. La diffusion est donc largement négligeable à l'échelle de l'interaction, de l'ordre de la picoseconde. La diffusivité thermique $\lambda_l = \kappa_l / \rho C_l$ de la silice fondue est très faible, de l'ordre de $10^{-6} m^2 s^{-1}$ pour des températures allant de de 300 K à 2800 K [46]. La longueur de diffusion thermique sur une durée Δt est alors $l_{th} = \sqrt{\lambda_l \Delta t}$. Elle atteint 1 μm pour une durée de 1 μs, ce qui signifie que la diffusion thermique est largement négligeable dans le cas des impulsions sub-picosecondes. Pour des dépôts d'énergie laser micrométriques, elle reste négligeable pour une durée totale d'irradiation supérieure à la microseconde. En conclusion, il est possible de négliger les phénomènes de diffusion dans le traitement de l'interaction avec une impulsion femtoseconde, et pour des excitations laser modérées.

Trois facteurs contribuent à la variation de l'énergie des électrons. Ils sont d'une part chauffés par l'absorption de l'énergie laser, qui est assurée par l'interaction électron-phonon-photon. Ils sont refroidis d'autre part au cours de l'ionisation par impact et le transfert d'énergie vers le réseau. En négligeant la diffusion de la température pour les deux sous-systèmes, on peut finalement réécrire le modèle à deux températures sous la forme [42] :

$$\frac{\partial U_e}{\partial t} = \sigma_{col} N_e I - \frac{3}{2} W'_G \Omega_{IPI} - \gamma_{el}(T_e - T_l), \tag{1.37}$$

$$\frac{\partial U_l}{\partial t} = \gamma_{el}(T_e - T_l), \tag{1.38}$$

Dans le cas des impulsions laser dont la durée est suffisamment faible devant le temps caractéristique de relaxation $\tau_{el} \sim 1$ ps, typiquement pour des impulsions de durée inférieure à 100 fs, on peut considérer que qu'aucun échange de chaleur vers le réseau n'a lieu pendant l'irradiation laser [41]. En supposant toute l'énergie électronique transférée au réseau, sa densité finale d'énergie s'écrit :

$$U_l = \int \left(\sigma_{col} N_e I - \frac{3}{2} W'_G \Omega_{IPI} \right) dt. \tag{1.39}$$

1.3 Propriétés optiques sous champ laser

Cette section aborde la modélisation des propriétés optiques des matériaux diélectriques sous champ laser. La fonction diélectrique qui détermine ces propriétés dépend des propriétés des électrons de conduction et de valence, elles-mêmes déterminées par les caractéristiques de l'impulsion laser et l'état de la matière. La permittivité diélectrique du matériau sera établie,

à partir du modèle de Drude pour les électrons de conduction, puis à partir de l'oscillateur de Lorentz pour les électrons de valence et les défauts. Enfin, l'influence de la température et la densité sur les propriétés optiques sera présentée.

La permittivité diélectrique décrit la réponse d'un milieu à un champ électrique appliqué. C'est la propriété optique la plus fondamentale puisqu'elle détermine l'indice de réfraction et les propriétés d'absorption des ondes électromagnétiques au sein du matériau. La présence d'un champ laser dans un milieu diélectrique agit sur les électrons de conduction, comme on l'a vu dans la sous-section 1.2.2, mais également sur les électrons de valence et sur les excitons auto-piégés. Le calcul complet de la fonction diélectrique doit donc tenir compte de l'ensemble de ces contributions. L'application d'un champ électrique déplace les électrons de leur position initiale, créant alors un déplacement électrique $\vec{D}$ incluant la réponse du matériau, c'est-à-dire la polarisation $\vec{P}$. La polarisation s'écrit :

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \sum \vec{P}. \tag{1.40}$$

Les polarisations linéaires des électrons de conduction $\vec{P}_c = \epsilon_0 \chi_c \vec{E}$ et de valence $\vec{P}_v = \epsilon_0 \chi_v \vec{E}$, et celle des défauts $\vec{P}_d = \epsilon_0 \chi_s \vec{E}$ sont les contributions au premier ordre de la polarisation, où χ_c, χ_v, χ_d sont respectivement les susceptibilités électriques des électrons de conduction, de valence et des STE. La permittivité totale $\epsilon = 1 + \chi$ est donnée par :

$$\epsilon = 1 + \chi_v + \chi_c + \chi_d \tag{1.41}$$

Le déplacement $\vec{r}_e(t)$ des électrons sous l'effet du champ entraîne l'apparition d'un moment dipolaire $\vec{p} = -e\vec{r}_e(t)$. La polarisation linéaire correspondant à la densité de ces dipôles, d'où :

$$\vec{P} = \epsilon_0 \chi \vec{E} = -eN_e \vec{r}_e \tag{1.42}$$

La permittivité diélectrique est donc déterminée en calculant le déplacement $\vec{r}_e(t)$. On présente ci-dessous deux modèles classiques fondés sur le principe fondamental de la dynamique. Le modèle de Drude détermine la contribution des électrons de conduction à la susceptibilité, le modèle de Drude-Lorenz est une extension de ce dernier incluant l'influence des électrons de valence (électrons liés) et des défauts.

1.3.1 Modèle de Drude

Dans la sous-section 1.2.2, le déplacement $\vec{r}_e$ des électrons de conduction soumis à champ laser d'amplitude E_0 et de pulsation ω_0 a été déterminé pour une fréquence de collision effective ν_e :

$$\vec{r}_e = \frac{e\vec{E}}{m_e \omega_0^2} \frac{1 - i\nu_e/\omega_0}{1 + \nu_e^2/\omega_0^2}. \tag{1.43}$$

Ce déplacement des électrons induit un moment dipolaire $-e\vec{r}_e$. La densité de dipôles est égale à la polarisation linéaire des électrons en bande de conduction, soit $\vec{P}_c = -N_e e\vec{r}_e = \epsilon_0 \chi_c \vec{E}$.

On identifie la susceptibilité linéaire des électrons de conduction :

$$\chi_c = \left(\frac{N_e e^2}{m_e \epsilon_0}\right) \frac{i\nu_e/\omega_0 - 1}{\omega_0^2(1 + \nu_e^2/\omega_0^2)}. \tag{1.44}$$

On peut ajouter la permittivité des électrons de valence au modèle de Drude en vu de calculer l'indice optique du matériau excité. Pour un milieu non excité, la fonction diélectrique est celle des électrons de valence, soit $\epsilon_v = 1 + \chi_v$. Dans ce cas, elle est simplement reliée à l'indice optique par la relation $\epsilon_v = n_0^2$. Pour rendre compte du dépeuplement de la bande de valence au cours de l'excitation laser, la fonction diélectrique en bande de valence prend la forme :

$$\epsilon_v = 1 + (n_0^2 - 1)\frac{N_v - N_e}{N_v}, \tag{1.45}$$

avec n_0 l'indice optique du matériau pour la fréquence laser ω_0. En mettant en évidence les parties réelles et imaginaires de ϵ_c, la fonction diélectrique $\epsilon = 1 + \chi_v + \chi_c$ du modèle de Drude s'écrit finalement [47]

$$\epsilon_c = 1 + (n_0^2 - 1)\frac{N_v - N_e}{N_v} - \left(\frac{\omega_p}{\nu_e}\right)^2 \left[\frac{1}{1 + (\omega_0/\nu_e)^2} + i\frac{1}{\omega_0/\nu_e(1 + (\omega_0/\nu_e)^2)}\right], \tag{1.46}$$

avec $\omega_p = \sqrt{N_e e^2/m_e\epsilon_0}$ la pulsation plasma.

Les propriétés optiques du matériau sont déterminées par l'indice optique complexe $\widetilde{n} = \sqrt{\epsilon} = \sqrt{\epsilon' + \epsilon''}$. On peut séparer ses parties réelles et imaginaires

$$\widetilde{n} = n + i\kappa, \tag{1.47}$$

où n correspond à l'indice optique du matériau et κ sa capacité d'absorption. On détermine ces deux composantes à partir de l'équation (1.46)

$$n = \sqrt{\frac{\sqrt{\epsilon'^2 + \epsilon''^2} + \epsilon'}{2}}, \tag{1.48}$$

$$\kappa = \sqrt{\frac{\sqrt{\epsilon'^2 - \epsilon''^2} + \epsilon'}{2}}. \tag{1.49}$$

La figure 1.10 présente l'évolution des parties réelle et imaginaire de l'indice optique d'après le modèle de Drude, en fonction de la densité N_e en bande de conduction et de la fréquence de collision effective ν_e, pour une longueur d'onde $\lambda_0 = 800$ nm. On constate que la partie réelle n est peu sensible à la fréquence de collision pour des densité inférieure à $N_c/2$, traduisant le fait que l'indice est en premier lieu dépendant de la densité électronique. L'influence de la densité électronique sur l'indice diminue avec l'augmentation de la fréquence de collision. Pour ν_e suffisamment élevé, l'indice reste inchangé quelle que soit la densité électronique. Dans ce cas, les collisions subies par l'électron sont telles que son accélération entre deux collisions est faible, ce qui limite également le champ électrique ainsi généré et donc les

modifications de l'indice. La partie imaginaire κ de l'indice passe par un maximum lorsque $\nu_e = \omega_0$, puisque cela correspond à la valeur maximale de la section efficace d'absorption du modèle de Drude (voir l'Eq. (1.13)). L'absorption augmente avec la densité électronique.

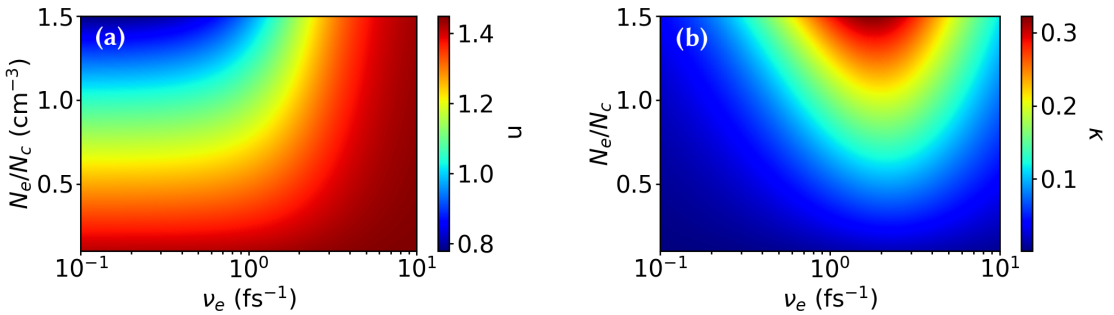

FIGURE 1.10 – Parties réelle (a) et imaginaire (b) de l'indice optique en fonction de la fréquence de collision et de la densité électronique selon le modèle de Drude (Eq. (1.46)).

1.3.2 Modèle de Drude-Lorentz

En l'absence de champ électrique, le nuage électronique des atomes reste au repos, là où un champ appliqué polarise les électrons de valence et ceux liés aux défauts. Le modèle de Drude-Lorentz décrit cette polarisation par un modèle d'oscillateur amorti afin d'inclure la contribution des électrons liés et des défauts [1]. Si l'on considère seulement la contribution des électrons de valence, un électron du cortège est soumis à trois forces : la force électrique issue du champ laser $\vec{E}$, une force de rappel liée au potentiel atomique, modélisée par un oscillateur harmonique de pulsation ω_G (telle que $\hbar\omega_G = W_G$), et un terme d'amortissement avec une fréquence correspondant à la fréquence résonnante Γ. Le terme d'amortissement caractérise l'interaction entre les électrons du cortège. L'équation du mouvement pour un électron lié est alors :

$$m_e \frac{d^2\vec{r}_e}{dt^2} = -m_e\Gamma\frac{d\vec{r}_e}{dt} - m_e\omega_G^2\vec{r} - e\vec{E}. \tag{1.50}$$

Notons que pour les électrons de conduction, ce modèle est équivalent au modèle de Drude (pas de force de rappel et $\Gamma = \nu_e$). En supposant des électrons oscillants en phase avec le champ, on obtient le déplacement des électrons :

$$\vec{r}_e = -\frac{e}{m_e}\frac{\vec{E}}{\omega_G^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma}. \tag{1.51}$$

L'atome polarisé constituant un dipôle électrostatique (le barycentre des charges positives ne coïncide pas avec celui des charges négatives, du fait de la polarisation), il est caractérisé par un moment dipolaire $\vec{p}(\omega) = -e\vec{r}(\omega)$. On obtient la susceptibilité χ_v des électrons de valence à partir de la relation $\vec{P}_v = -N_v e\vec{r}_e = \epsilon_0\chi_v\vec{E}$:

$$\chi_v = \frac{e^2}{m_e\epsilon_0}\left(\frac{N_v}{\omega_G^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma}\right) \tag{1.52}$$

Les atomes réels possèdent de nombreux niveaux électroniques, il existe donc de nombreuses fréquences résonantes en termes de dispersion et d'absorption. Le modèle de Lorentz peut rendre compte de ces résonances à un niveau macroscopique en sommant les contributions de chaque oscillateur [3, 48] :

$$\chi = \frac{e^2}{m_e \epsilon_0} \sum_{i=1}^{N} \frac{f_i N_i}{\omega_i^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma_i}, \tag{1.53}$$

avec f_i l'amplitude de l'oscillateur, N_i la densité correspondante, ω_i sa pulsation et Γ_i son amortissement. Ces coefficients sont déterminés empiriquement pour un matériau donné. Considérant un unique état STE d'excitation intermédiaire, on peut formuler un modèle simple décrivant l'indice optique complexe :

$$n^2 = 1 + \frac{e^2}{m_e \epsilon_0} \left(\frac{-N_e}{\omega^2 - i\nu_e^2} + \frac{f_v N_v}{\omega_G^2 - \omega^2 - i\omega/\tau_v} + \frac{f_{STE} N_{STE}}{\omega_S^2 - \omega^2 - i\omega/\tau_{STE}} \right). \tag{1.54}$$

Le premier terme décrit la contribution des électrons de conduction (pas de force de rappel pour les électrons de conduction), le second celle des électrons de valence et le troisième celle des STE. Les pulsation ω_G et ω_{STE} sont telles que $\hbar\omega_G = W_G$ et $\hbar\omega_{STE} = W_{STE}$. Dans le spectre visible, l'absorption d'un photon d'énergie $\hbar\omega$ par les électrons de valence est prohibée. Les électrons de valence contribuent donc essentiellement à la partie réelle de l'indice de réfraction. L'indice optique étant pour une longueur d'onde donné dans le domaine visible peut être approché par :

$$n^2 = 1 + (n_0^2 - 1)\frac{N_v - N_e}{N_v} + \frac{e^2}{m_e \epsilon_0} \left(\frac{-N_e}{\omega^2 - i\nu_e^2} + \frac{f_{STE} N_{STE}}{\omega_{STE}^2 - \omega^2 - i\omega/\tau_{STE}} \right). \tag{1.55}$$

Notons enfin que la densité de STE est très inférieure à celle des électrons de valence, limitant leur contribution à la partie réelle de l'indice optique. Par ailleurs, l'énergie de ces niveaux est en général proche de la bande de conduction (3 eV pour la silice [14], 1 eV pour le saphir [48]). Leur contribution à la partie imaginaire de l'indice est donc également très faible dans le domaine optique. C'est pourquoi le modèle de Drude reste largement privilégié pour décrire l'indice optique dans les modèles de propagation laser.

1.3.3 Influence de l'état thermodynamique

L'évolution de l'indice optique soumis à une élévation de température est associée à la dilatation de ce matériau ainsi qu'aux transitions de phase qu'il subit. Ces effets entraînent une évolution de la polarisabilité α du matériau, c'est-à-dire sa capacité à acquérir un moment dipolaire sous l'effet d'un champ et donc la capacité du cortège électronique à se déformer sous l'effet de ce champ. Du point de vue du modèle de Drude-Lorentz, la densité, l'amplitude et la force d'amortissement de l'oscillateur caractérisant les électrons de valence sont modifiés. L'état thermodynamique d'un matériau, à savoir sa température, sa densité et sa

phase, a donc une influence sur la propagation des impulsions laser à travers la polarisabilité. Une illustration de l'importance de la température est l'effet de lentille thermique [49] pour les laser de haute puissance.

Pour un matériau diélectrique, la variation d'indice n avec la température T correspond à la variation directement liée à la température ainsi qu'à celle liée à la dilatation, soit [50] :

$$\frac{dn}{dT} = \left(\frac{\partial n}{\partial T}\right)_{\rho} + \left(\frac{\partial \rho}{\partial T}\right)\left(\frac{\partial n}{\partial \rho}\right)_{T} \tag{1.56}$$

ou encore

$$\frac{dn}{dT} = \left(\frac{\partial n}{\partial T}\right)_{\rho} - \gamma\left(\frac{\rho \partial n}{\partial \rho}\right)_{T}, \tag{1.57}$$

avec ρ la densité du matériau et $\gamma = -1/\rho(\partial\rho/\partial T)$ le coefficient d'expansion thermique. Ce coefficient est positif par convention puisque la plupart des matériau se dilatent avec l'augmentation température ($\partial\rho/\partial T < 0$). L'augmentation de température tend généralement à augmenter l'indice là où la dilatation tend à le diminuer. Afin d'évaluer l'influence de la densité, on s'intéressera dans un premier temps au second terme de la partie droite de l'équation. (1.57). On évaluera ensuite l'influence de la température à partir du premier terme à droite.

1.3.3.1 Influence de la densité

Les variations de densité dans le matériau suite à une dépôt d'énergie peuvent être liés à la dilatation thermique, aux transitions de phase, ou bien à la réponse hydrodynamique entraînant la formation d'ondes de pression. Afin de découpler l'effet de la température de celle de la densité, on s'intéresse ici au terme $\gamma(\rho\partial n/d\partial\rho)_T$ de l'équation (1.57), c'est-à-dire la variation de densité à température constante. Cela correspond donc aux densité des différents polymorphes du matériau considéré, c'est-à-dire à ses différentes configurations chimiques. La figure 1.11 présente les variations de densité et d'indice pour les différentes phases solides de la silice. Les polymorphes correspondant présentent des structures et donc des densités différentes, le quartz étant le plus répandu. Ils sont obtenus par un chauffage du quartz, passant par les différentes phases jusqu'à atteindre sa forme amorphe à la température de fusion, autour de 1700 °C, annihilant sa structure cristalline. La silice fondue est alors obtenue par refroidissement rapide du matériau. On constate une dépendance linéaire entre l'indice et la densité.

La polarisabilité α d'un matériau est sa capacité à acquérir un moment dipolaire sous l'effet d'un champ appliqué, c'est-à-dire la capacité du cortège électronique à se déformer sous l'effet de ce champ. Elle dépend de la susceptibilité et de la densité de dipôles, introduisant ainsi une relation entre l'indice de réfraction et la densité du matériau. Pour un matériau isotrope, la polarisabilité est un scalaire et l'on a $\vec{p}(\omega) = \alpha(\omega)\vec{E}$. Dans le cas du modèle de

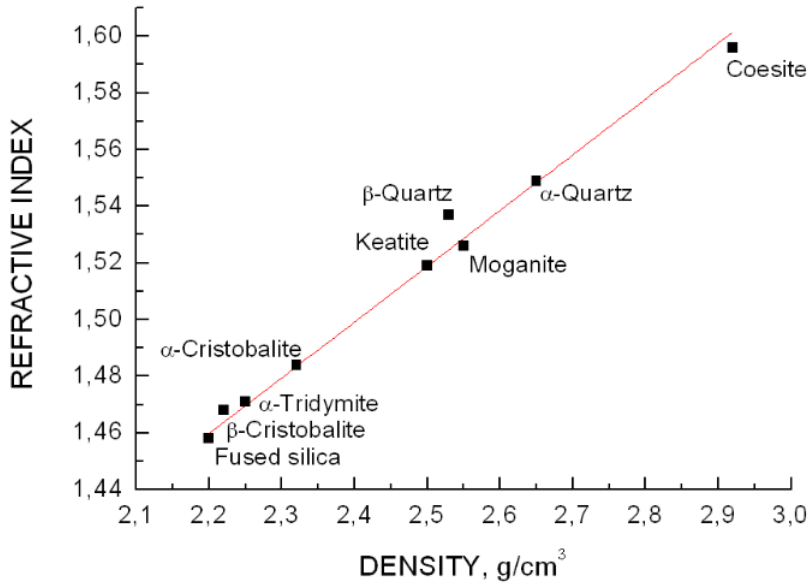

FIGURE 1.11 – Évolution de l'indice de réfraction de la silice fondue avec la densité [51].

Lorentz, la polarisabilité d'une espèce donnée du matériau s'écrit :

$$\alpha(\omega) = \frac{e^2}{m_e} \times \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\Gamma}. \tag{1.58}$$

La densité de polarisation $\vec{P}$ est la moyenne des moments dipolaires sur l'ensemble des atomes du matériau. Il est commode de moyenner la contribution des différents atomes de densité ρ_i et de masse molaire M_i constituant le matériau :

$$\vec{P}(\omega) = \frac{1}{V}\sum_V \vec{p_i}(\omega) = \langle N_i \alpha_i(\omega)\rangle \vec{E}, \tag{1.59}$$

où $N_i = \rho_i/M_i$ est la densité d'atomes. Cette formulation permet d'introduire la polarisabilité moyenne $\alpha = \langle\alpha_i(\omega)\rangle$. Il est possible de relier cette polarisabilité moyenne à l'indice optique et à la densité du matériau afin de finalement établir la relation entre la variation d'indice et la variation de densité [50, 52] à partir des modèles décrivant la permittivité présentés précédemment.

Dans les modèles de Lorentz et de Drude de la permittivité, on suppose que le champ appliqué aux atomes est égal au champ laser $\vec{E}$, et donc que les atomes voisins n'ont pas d'influence les uns sur les autres. Dans ce cas, le moment dipolaire subit par un atome sous l'effet du champ laser n'inclut pas le champ électrique induit par les dipôles voisins. On montre alors que l'indice optique est lié à la densité par la relation [52] :

$$n^2 - 1 = \frac{\rho\alpha}{\epsilon_0 M}, \tag{1.60}$$

Il est cependant souvent supposé que le champ induit par les dipôles vaut $E_{ind} = \vec{P}/3\epsilon_0$, où $\vec{P}$ est la polarisation induite par le champ laser. Dans ce cas on obtient la relation :

$$\frac{n^2-1}{n^2+2} = \frac{\rho\alpha}{3\epsilon_0 M}, \tag{1.61}$$

appelé modèle de Lorentz-Lorenz ou modèle de Clausius-Mosssoti. Le choix du modèle dépend du matériau considéré. Pour les gaz dont l'indice est proche de 1, les deux relations sont équivalentes. On peut différencier les deux côtés de l'équation (1.61) et mettre en évidence la variation d'indice dn associée à la densification de la silice $d\rho/\rho$ [51] :

$$dn = \frac{(n^2-1)(n^2+2)}{6n}(1+K)\frac{d\rho}{\rho}, \tag{1.62}$$

où $K = (d\alpha/\alpha)/(d\rho/\rho)$ est le rapport de la variation relative de la polarisabilité moyenne sur la variation relative de densité. La polarisabilité moyenne de la silice fondue peut être évaluée à partir de la théorie de la dispersion [53]. Il a été montré que pour une fréquence laser donnée, la polarisabilité évolue linéairement avec la densité du matériau [54]. Le paramètre K est donc constant pour une fréquence donnée, et l'indice de réfraction évolue linéairement avec la densité. Les données expérimentales corroborent ces approches théoriques. À partir de la figure 1.11 on vérifie que l'indice de la silice évolue comme :

$$\rho\frac{\partial n}{\partial \rho} = 0.44. \tag{1.63}$$

Des mesures directement confrontées au modèle de Lorentz-Lorenz rapportent $\rho\partial n/\partial\rho = 0.43$ [55] pour la silice fondue, confortant la valeur avancée dans l'équation (1.63). Pour obtenir une variation d'indice de l'ordre de 10%, une forte variation de la densité est nécessaire, de l'ordre de 30 % pour la silice.

1.3.3.2 Influence de la température

Comme expliqué en préambule de cette sous-section, les variations d'indice avec la température ont une origine directe, et une indirecte via la dilatation thermique. Le coefficient de dilatation thermique de la silice est $\gamma \simeq 0.5\ 10^{-6}\ \mathrm{K}^{-1}$ [50]. On en déduit en utilisant l'équation 1.63 :

$$\gamma\left(\frac{\rho\partial n}{\partial\rho}\right)_T \simeq 0.22\ 10^{-6}\ \mathrm{K}^{-1}. \tag{1.64}$$

Dans la silice, les variations d'indice liées à la dilatations thermique sont donc extrêmement faibles. L'influence directe de la température sur l'indice pour une longueur d'onde λ peut être évaluée à partir de la loi de Sellmeier :

$$n^2(\lambda) = 1 + \frac{A_1\lambda^2}{\lambda^2 - A_2^2} + \frac{B_1\lambda^2}{\lambda^2 - B_2^2} + \frac{C_1\lambda^2}{\lambda^2 - C_2^2}. \tag{1.65}$$

Les coefficients A_i, B_i et C_i sont déterminés empiriquement. L'influence de la température sur l'indice est déterminée en incluant la dépendance linéaire à la température dans ces coefficients. Pour la silice fondue Tan *et al.* [56] rapportent finalement :

$$\frac{dn}{dT} \simeq 10^{-5}\ \mathrm{K}^{-1} \tag{1.66}$$

pour des températures de 100 à 500 °C. Cette valeur est cohérente avec celle rapportée par Waxler *et al.* avec $dn/dT = 0.91\ 10^{-5}\ \mathrm{K}^{-1}$ pour la même plage de températures [50]. Une variation de température de quelques 10^3 K entraîne donc une variation d'indice de quelques pourcents. Cet effet reste donc relativement marginal devant celui des électrons de conductions qui engendrent des variations de l'indice de l'ordre de la dizaine de pourcents même pour des excitations laser modérées.

En conclusion, l'évolution de l'indice de réfraction avec la température peut être obtenu de manière simple et purement empirique compte tenu des relation linéaires entre ces grandeurs. Dans le cas d'une impulsion laser femtoseconde proche du seuil d'ionisation interagissant avec un matériau diélectrique, l'influence de l'état thermodynamique est négligeable devant celui des électrons de conduction. Ils peuvent devenir significatifs en régime multi-impulsionnel avec le chauffage matériau.

1.4 Propagation laser

On présente dans cette section les éléments essentiels concernant la propagation d'une impulsion laser et son interaction avec un matériau. Bien que ces aspects soient bien connus, il est important de rappeler les hypothèses qui leurs sont associées. On explicitera dans un premier temps l'origine des effets non-linéaires lors de l'interaction, afin de présenter dans un second temps l'équation de Schrödinger non-linéaire, équation de propagation couramment utilisée dans le cadre de la structuration de matériaux diélectriques. On abordera ensuite l'équation paraxiale dans le vide comme un cas particulier, qui permettra de traiter l'impulsion gaussienne. Enfin, on présentera la notion de couplages spatio-temporels grâce à l'optique matricielle.

1.4.1 Cas général : origine des effets non-linéaires

L'évolution d'un champ laser est décrit par les équations de Maxwell pour les champs électrique $\vec{E}(\vec{r},t)$ et magnétique $\vec{B}(\vec{r},t)$:

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = 0, \tag{1.67}$$
$$\vec{\nabla} \wedge \vec{E} = -\partial_t \vec{B}, \tag{1.68}$$
$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0, \tag{1.69}$$
$$\vec{\nabla} \wedge \vec{B} = \mu_0 \partial_t \vec{D} + \mu_0 \vec{J}, \tag{1.70}$$

avec $\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}$ le déplacement électrique, ϵ_0 est la permittivité diélectrique du vide, $\vec{P}$ la polarisation et $\vec{J}$ la densité de courant de totale. Notons qu'ici $\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = 0$ puisque le milieu est globalement neutre. La densité de courant $\vec{J} = \vec{J_e} + \vec{J_i}$ est la somme du courant $\vec{J_e} = -eN_e\vec{u_e}$ lié à l'oscillation des électrons dans le champ laser avec une densité N_e et une vitesse $\vec{u_e}$, et le courant effectif $\vec{J_i}$ lié à la génération d'électrons par photoionisation avec un taux Ω_{PI}. Le courant d'ionisation est déterminé par conservation de l'énergie [12] :

$$\langle \vec{J_i} \cdot \vec{E} \rangle = \frac{1}{2} W_G \Omega_{PI}. \tag{1.71}$$

Le courant total s'écrit alors :

$$\vec{J} = -eN_e\vec{u_e} - \frac{1}{2}\frac{\vec{E}}{|\vec{E}|^2} W_G \Omega_{PI}. \tag{1.72}$$

La susceptibilité dépendant du matériau et en particulier de la symétrie de sa structure atomique, il en est de même pour la polarisation et les effets non-linaires mis en jeu. On définit $\vec{P} = \epsilon_0 \chi \vec{E}$ de manière générale comme la somme des contributions aux différents ordres [57] :

$$\vec{P} = \vec{P}^{(1)} + \vec{P}^{(2)} + \vec{P}^{(3)} + ... \tag{1.73}$$

Pour une pulsation ω donnée, on peut faire apparaître la susceptibilité et la dépendance au champ :

$$\vec{P}(\omega) = \epsilon_0 \left(\chi^{(1)}(\omega)\vec{E}(\omega) + \chi^{(2)}(\omega)\vec{E}^2(\omega) + \chi^{(3)}(\omega)\vec{E}^3(\omega) + ... \right) \tag{1.74}$$

Ces contributions à la polarisation correspondent à différents effets physiques [57]. La polarisation linéaire $\vec{P}^{(1)} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}$ est liée à l'indice de réfraction pour des champs laser faibles, ce qui suffit a décrire les phénomènes de réflexion et de réfraction de l'optique linéaire en milieu isotrope. La polarisation linéaire des milieux anisotropes explique également le phénomène de biréfringence. La polarisation au second ordre donne lieu à une contribution du champ en 2ω, c'est-à-dire à la génération de seconde harmonique. Dans un milieu anisotrope, le second ordre est à l'origine d'une biréfringence avec une dépendance linéaire de l'indice de réfraction avec le champ appliqué, aussi appelé effet Pockels. Toutefois, dans les matériaux centro-symétriques, le terme $\chi^{(2)}$ s'annule et avec lui la polarisation au second ordre [57]. Le troisième ordre peut avoir un effet significatif selon l'intensité laser. Il est à l'origine de l'effet Kerr et de la génération de troisième harmonique. On décompose la polarisation en une partie linéaire et une partie non-linéaire :

$$\vec{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E} + \vec{P_{NL}}. \tag{1.75}$$

En considérant une réponse instantanée du milieu un domaine spectral restreint à la composante centrale ω_0 on a $\vec{P_{NL}} = \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3$ avec $\chi^{(3)} = 4n_0^2 \epsilon_0 c^2 / 3n_2$. L'indice n_2 est l'indice de réfraction non-linéaire à l'origine d'une variation de l'indice de réfraction proportionnelle au

carré du champ, soit :

$$n = n_0 + n_2 E^2 \tag{1.76}$$

Cette variation non-linaire de l'indice entraîne l'auto-focalisation des lasers intenses pour des propagations sur de longues distances, qui s'oppose à la divergence du faisceau et conduit à une intensité maximale en amont du point focal. Ce phénomène a lieu lorsque la puissance du laser excède la puissance dans le matériau considéré (2.8 MW dans la silice pour $\lambda_0 = 800$ nm).

1.4.2 Équation de Schrödinger non-linéaire

Bien que les équations de Maxwell décrivent de manière exacte la propagation laser, leur résolution numérique est lourde. C'est pourquoi des modèles simplifiés sont souvent utilisés [5, 58, 59]. Comme nous venons de le voir, le déplacement électrique et la polarisation correspondante sont à l'origine des effets non-linéaires lors de la propagation. Il est possible d'établir une équation de propagation incluant la polarisation non-linéaire, aussi appelée équation de Schrödinger non-linéaire (*Nonlinear Schrödinger Equation* ou NLSE) [57] dérivée dans l'Annexe C. Avant de présenter cette équation, résumons les hypothèses principales qui la sous-tendent. La première est l'approximation paraxiale, impliquant une ouverture numérique modérée du faisceau ($NA \leq 0.3$), et des angles faibles de déflexion (angles paraxiaux) des rayons lumineux par la densité de charge. Cette dernière condition entraîne la nécessité de l'unidirectionnalité de la propagation du champ, c'est-à-dire une réflexion négligeable de l'impulsion par la densité électronique. La deuxième hypothèse est celle de l'enveloppe lentement variable, vérifiée pour des impulsions de durée supérieure à environ 100 fs. Remarquons que cette deuxième hypothèse n'est pas inhérente à NLSE mais peut-être appliquée pour les impulsions suffisamment longues, dans un souci de simplification. En coordonnées polaires (r, x), avec $r = \sqrt{y^2 + z^2}$ la direction transverse et x la direction de propagation et pour l'enveloppe $E(x, r, t)$ du champ prend, NLSE prend la forme [5, 58, 59] :

$$\frac{\partial E}{\partial x} = \left[\frac{i}{2k_0}\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\frac{\partial}{\partial r}\right) - \frac{i}{2}k_2\frac{\partial^2}{\partial t'^2} + i\frac{\omega_0 n_2}{c}I - \frac{\sigma_{col}}{2}\left(1 + i\omega_0/\nu_e\right)N_e - \frac{W_G\Omega_{PI}(N_v - N_e)}{2I}\right]E, \tag{1.77}$$

avec k_2 la dispersion de vitesse de groupe de second ordre, n_2 l'indice de second ordre et σ_{col} la section efficace d'absorption du modèle de Drude (Eq. (1.13)). Le premier terme de droite correspond à la diffraction, le second à la dispersion de vitesse de groupe, le troisième à l'effet Kerr, le quatrième à l'absorption plasma et à la défocalisation plasma et le cinquième à la photoionisation. Il est instructif d'adimensionner l'équation (1.77) et mettre en évidence les longueurs caractéristiques liées à chaque effet physique. Dans un souci de simplicité, on réduit le problème à deux dimensions spatiales (x, z), avec x la direction de propagation et z la direction transverse. En considérant une impulsion laser gaussienne telle que $E(x = 0, z, t) = E_0 \exp(-z^2/w_0^2 - t^2/\tau_0^2)$, on procède à l'adimensionnement $\bar{z} \to w_0 z$ (avec w_0 le waist du faisceau), $\bar{x} \to x_R x$, où $x_R = n_0 \pi w_0^2/\lambda_0$ est la longueur de Rayleigh, $\bar{t} \to t/\tau_0$,

$\bar{E} \rightarrow E_0 \times E$ (avec E_0 l'amplitude du champ) et $\bar{N}_e = N_e \times N_c$, ce qui conduit à :

$$\partial_{\bar{x}}\bar{E} = \left[\frac{i}{4}\partial_{\bar{z}}^2 - i\bar{\lambda}_{GVD}^{-1}\partial_{\bar{t}}^2 + i\bar{\lambda}_K^{-1}|\bar{E}|^2 - \bar{\lambda}_{PA}^{-1}\bar{N}_e - i\bar{\lambda}_{def}^{-1}\bar{N}_e - \frac{\bar{\lambda}_{MPI}^{-1}}{E_0^2}\right]\bar{E}(\bar{x},\bar{z},\bar{t}), \tag{1.78}$$

où les paramètres $\widetilde{\lambda}$ correspondent aux longueurs caractéristiques adimensionnées par la longueur de Rayleigh x_R des différents processus intervenant dans la propagation. Elles s'écrivent :

$$\bar{\lambda}_{GVD} = \frac{2\tau_0^2}{k_2 x_R} \text{ : dispersion de vitesse de groupe ;}$$
$$\bar{\lambda}_K = \frac{1}{k_0 x_R n_2 E_0^2} \text{ : effet Kerr / auto-focalisation ;}$$
$$\bar{\lambda}_{PA} = \frac{2}{\sigma_{col} N_c x_R} \text{ : absorption plasma ;}$$
$$\bar{\lambda}_{def} = \frac{2\omega_0/\nu_e}{\sigma_{col} N_c x_R} \text{ : défocalisation plasma ;}$$
$$\bar{\lambda}_{MPI} = \frac{2E_0^2}{W_G x_R \Omega_{PI}} \text{ : absorption multiphotonique .}$$

Cette formulation permet de comparer les ordres de grandeurs des processus dans une configuration laser donnée et pour une excitation donnée du matériau.

1.4.3 Propagation linéaire

Avant de modéliser l'interaction d'une impulsion laser avec un matériau, il est utile de comprendre sa propagation dans le cadre de l'optique linéaire. L'intérêt réside également dans la dérivation des différentes équations de propagation et les approximations associées. Les approximations visant à simplifier l'équation de propagation dans le vide sont également utilisées dans NLSE. Cela permettra d'aborder le cas d'une impulsion gaussienne ainsi que la description des couplages spatio-temporels.

Les équations de Maxwell (1.79) à (1.82) décrivent l'évolution des champs électrique $\vec{\mathcal{E}}(x,y,z,t)$ et magnétique $\vec{\mathcal{B}}(x,y,z,t)$ en l'absence de charge et de courant :

$$\vec{\nabla}\cdot\vec{D} = \vec{0}, \tag{1.79}$$
$$\vec{\nabla}\wedge\vec{E} = -\partial_t\vec{B}, \tag{1.80}$$
$$\vec{\nabla}\cdot\vec{B} = 0, \tag{1.81}$$
$$\vec{\nabla}\wedge\vec{B} = \mu_0\partial_t\vec{D}, \tag{1.82}$$

Considérons $\vec{E}$ polarisé linéairement selon z et se propageant dans la direction x, soit $\vec{E} = E_0 e^{-i(\omega_0 t - kx)}\vec{e_z}$, avec $\omega_0 = kc$ la pulsation, $k = n_0 k_0 = 2n_0\pi/\lambda_0$ le nombre d'onde, $c = c_0/n_0$ la vitesse de la lumière dans le milieu, λ_0 la longueur d'onde dans le vide et n_0 l'indice optique du milieu. A partir de l'équation (1.80) et avec $\vec{B} \propto e^{-i(\omega_0 t - k_0 x)}$, on obtient $\vec{B} =$

$\frac{E_0}{c}e^{-i(\omega_0 t-k_0 x)}\vec{e_y}$. Les champs $\vec{E}$ et $\vec{B}$ sont alors orthogonaux entre eux et également à la direction de propagation.

1.4.3.1 Équation paraxiale

En calculant le rotationnel de l'équation (1.80), où l'on néglige les gradients spatiaux de la permittivité, puis en utilisant les équations (1.79) et (1.82), on établit l'équation d'onde pour $\vec{E}$:

$$\Delta\vec{E} - c^{-2}\partial_t^2\vec{E} = \vec{0}, \tag{1.83}$$

avec $\Delta = \partial_x^2 + \partial_y^2 + \partial_z^2$ l'opérateur Laplacien. L'équation d'évolution du champ magnétique est identique à l'équation (1.83) et peut être obtenue en calculant le rotationnel de l'équation (1.82) et en utilisant Eqs. (1.81) et (1.80).

On représente $\vec{E}$ se propageant dans la direction x et polarisé selon z, en ajoutant un terme d'enveloppe caractérisant l'impulsion laser $E(x,y,z,t) = E_0(x,y,z,t)e^{-i(\omega_0 t-kx)}\vec{e_z}$. En injectant cette expression dans l'équation d'onde (1.83), on obtient une équation d'évolution scalaire pour l'enveloppe $E_0(x,y,z,t)$:

$$\nabla_\perp^2 E_0 + 2ik\left(\partial_x + \frac{\partial_t}{c}\right)E_0 = -\partial_x^2 E_0 + c^{-2}\partial_t^2 E_0, \tag{1.84}$$

avec $\nabla_\perp^2 = \partial_y^2 + \partial_z^2$ l'opérateur de gradient transverse et x la direction de propagation. On se place dans un repère retardé (x', t') se déplaçant à la vitesse de l'impulsion dans le matériau c_0/n_0, impliquant $t' = t - x/c$ et $x' = x$. Cette transformation est couramment utilisé dans ce type de problèmes [60]. Dans ce repère, l'origine $t' = 0$ pour un x donné correspond à l'instant où le maximum de l'impulsion coïncide avec la position x. Le terme $c^{-2}\partial_t^2 E_0$ de l'équation (1.84) disparaît alors :

$$\nabla_\perp^2 E_0 + 2ik\left(1 + \frac{\partial_{t'}}{\omega_0}\right)\partial_{x'}E = -\partial_{x'}^2 E_0. \tag{1.85}$$

Dans le cadre de l'approximation paraxiale, l'échelle caractéristique d'évolution du champ dans la direction longitudinale $E_0/(|\partial_x E_0)|$, est très grande devant la longueur d'onde λ du laser. Cette approximation est valable pour une impulsion laser modérément focalisée. On néglige alors le terme de droite de l'équation (1.84), puisque $|k\partial_{x'}E_0| \gg |\partial_{x'}^2 E_0|$, et l'on obtient :

$$(2ikT\partial_{x'} - \nabla_\perp^2)E_0(x', k_\perp, t') = 0. \tag{1.86}$$

avec $T = \left(1 + \frac{i\partial_{t'}}{\omega_0}\right)$ décrivant la dispersion temporelle de l'impulsion. Cette équation est appelée équation paraxiale. Elle permet de décrire la propagation libre d'une impulsion laser faiblement focalisée dans un milieu d'indice n_0. On exprime cette équation dans le domaine de Fourier $(k_\perp, \Omega)$ en utilisant $\partial_{t'} \to -i\Omega$ et $\partial_{y,z} \to -ik_{y,z}$:

$$(2ik_0\widehat{T}\partial_{x'} - k_\perp^2)E_0(x', k_\perp, \Omega) = 0, \tag{1.87}$$

avec $k_\perp^2 = k_y^2 + k_z^2$ et $\widehat{T} = \left(1 + \frac{\Omega}{\omega_0}\right)$. Notons que pour des impulsions contenant de nombreux cycles optiques, l'enveloppe du champ varie lentement à l'échelle des oscillations à la pulsation ω. On a dans ce cas $T = \widehat{T} = 1$, ce qui constitue l'approximation d'enveloppe lentement variable. La solution de (1.87) est obtenue par intégration directe selon x' et l'on a :

$$E_0(x, k_\perp, \Omega) = E_0(0, k_\perp, \Omega) \exp\left(-\frac{ik_\perp^2 x'}{2k\widehat{T}}\right). \tag{1.88}$$

La condition de bord $E_0(0, k_\perp, \Omega)$ détermine alors la solution complète et peut correspondre, par exemple, à un faisceau de Bessel, un faisceau gaussien, ou une impulsion présentant des couplages.

1.4.3.2 Impulsion gaussienne

On s'intéresse ici à la propagation d'une impulsion gaussienne, notamment pour souligner ses caractéristiques et mettre en évidence la méthode de résolution. Pour traiter l'impulsion gaussienne se propageant dans la direction x, on se place dans le cadre de l'approximation d'enveloppe lentement variable. On résout donc l'équation (1.87) [2] avec $\widehat{T} = 1$:

$$E(x, k_\perp, t) = E(0, k_\perp, t) \exp\left(-\frac{ik_\perp^2 x}{2k}\right). \tag{1.89}$$

On considère une condition de bord gaussienne d'amplitude E_0, de rayon (waist) w_0 et de durée τ_0 :

$$E(0, y, z, t) = E_0 \exp\left(-\frac{y^2 + z^2}{w_0^2} - \frac{t^2}{\tau_0^2}\right). \tag{1.90}$$

On exprime la condition de bord (1.90) dans le domaine de Fourier $(k_\perp, t)$ (voir Annexe B) :

$$E(0, k_\perp, t) = \frac{E_0}{w_0} \exp\left(-\frac{w_0^2 k_\perp^2}{4} - \frac{t^2}{\tau_0^2}\right). \tag{1.91}$$

En injectant cette condition de bord dans la solution (1.89) et en réalisant sa transformée de Fourier inverse (voir Annexe B), on obtient la solution dans l'espace réel :

$$E(x, y, z, t) = \sqrt{f(x)} E_0 \exp\left(-f(x)\frac{y^2 + z^2}{w_0^2} - \frac{t^2}{\tau_0^2}\right), \tag{1.92}$$

avec $f(x) = 1/(1 + ix/x_R)$ une fonction décrivant l'évolution du rayon et de la courbure du faisceau. En déterminant l'intensité laser $I = |EE^*|$ et à partir de la définition de l'intensité pour une impulsion gaussienne :

$$I(x, y, z, t) = \left(\frac{w_0}{w(x)} E_0\right)^2 \exp\left(-\frac{2(y^2 + z^2)}{w^2(x)} - \frac{2t^2}{\tau_0^2}\right), \tag{1.93}$$

2. Pour alléger les notations dans tout ce qui suit, on notera l'enveloppe $E(x, k_\perp, t)$ et non $E_0(x, k_\perp, t)$, et on notera E_0 l'amplitude du champ.

on retrouve le résultat connu pour l'évolution du rayon de l'impulsion gaussienne avec la propagation $w(x) = w_0\sqrt{1+(x/x_R)^2}$ [61]. La grandeur d'intérêt pour les impulsions laser est l'ouverture numérique NA, définie par :

$$NA = \frac{w_0}{x_R}. \tag{1.94}$$

Cette grandeur représente l'angle $\theta = \arctan(w_0/x_R)$ d'ouverture du faisceau. En particulier, dans le cadre de l'approximation paraxiale, l'angle d'ouverture est faible. L'ouverture numérique est alors égale à l'angle d'ouverture, soit $\tan(\theta) \simeq \theta \simeq NA$. Notons finalement que pour les impulsions gaussiennes, l'ouverture numérique constitue l'unique degré de liberté spatial sur le faisceau. La focalisation d'un faisceau gaussien est schématisée sur la figure 1.12.

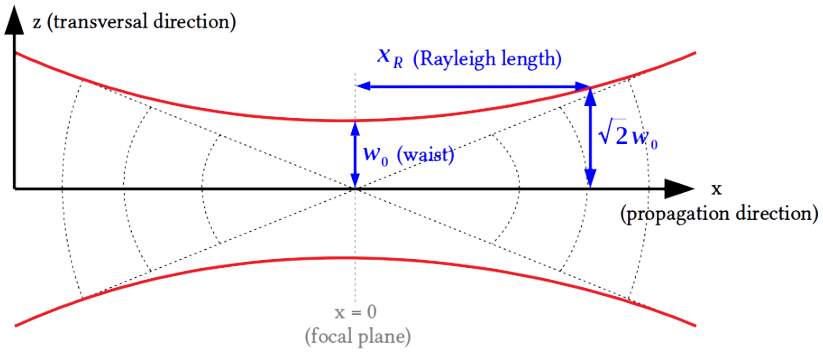

FIGURE 1.12 – Représentation schématique de la focalisation d'un faisceau gaussien dans le vide.

1.4.4 Couplages spatio-temporels

Nous venons d'étudier la propagation libre d'une impulsion gaussienne et d'introduire la notion d'ouverture numérique qui constitue son unique degré de liberté spatial. Il est également possible d'introduire une mise en forme dite spatio-temporelle, pour laquelle les extensions spatiale et temporelle de l'impulsion sont couplées. C'est le cas lors de la focalisation spatio-temporelle (*Simultaneous Spatial and Temporal Focusing* ou SSTF), méthode dans laquelle la durée de l'impulsion diminue lors de la focalisation [62]. Cette méthode sera décrite en détail dans la sous-section 1.5.1. Nous introduisons dans cette sous-section la notion de couplage spatio-temporelle avec le formalisme de l'optique matricielle.

1.4.4.1 Optique matricielle

Le formalisme de l'optique matricielle permet de décrire la trajectoire de rayons lumineux paraxiaux à travers un système optique. D'une source ponctuelle émergent plusieurs rayons lumineux, caractérisés par une position transverse initiale x_{in} et un angle θ_{in} par rapport à l'axe de propagation. Le front d'onde associé est caractérisé par son rayon de courbure

$R_{in} = x_{in}/\tan(\theta_{in}) \sim x_{in}/\theta_{in}$ (approximation paraxiale). Chaque élément optique (lentille, interface ou propagation libre par exemple), est décrit par une matrice de transfert 2×2, dite "matrice ABCD", agissant sur le vecteur $(x_{in}, \theta_{in})^T$ décrivant le rayon lumineux incident. La position x_{out} et la pente θ_{out} après un composant optique sont donnés par :

$$\begin{pmatrix} x_{out} \\ \theta_{out} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_{in} \\ \theta_{in}, \end{pmatrix}. \tag{1.95}$$

On peut interpréter les coefficients de la manière suivante : A représente le grandissement, B la divergence, C la courbure et D le grandissement angulaire introduits par le système. On peut réduire le système (1.95) à une unique équation pour le rayon de courbure $q_{out} = x_{out}/\theta_{out}$, en divisant la première équation du système par la deuxième :

$$q_{out} = \frac{Aq_{in} + B}{Cq_{in} + D}. \tag{1.96}$$

Cette relation, souvent appelée règle ABCD, sera notamment utilisée pour traiter la propagation d'un faisceau gaussien à travers un système optique. Pour l'exemple, on considère un faisceau caractérisé par $(x_{in}, \theta_{in})^T$, en propagation libre sur une distance d. Au cours de la propagation, la pente ne varie pas, d'où $\theta_{in} = \theta_{out}$. Sa position varie cependant tel que $x_{out} = x_{in} + d \times \theta_{in}$. On peut réécrire ce systèmes de deux équations sous forme matricielle :

$$\begin{pmatrix} x_{out} \\ \theta_{out} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & d \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_{in} \\ \theta_{in} \end{pmatrix}, \tag{1.97}$$

ce qui fait apparaître la matrice de transfert pour une propagation sur une distance d. De manière analogue, on peut retrouver les matrices de transferts correspondant à différents composants optiques [63]. La résolution de l'équation paraxiale traitée dans la sous-sous-section 1.4.3.2 a permis d'obtenir le mode fondamental de propagation d'un faisceau gaussien dans le vide :

$$E(x, z) \propto \exp\left[-\left(\frac{1}{w^2(x)} - \frac{ik_0}{2R_c(x)}\right) z^2\right], \tag{1.98}$$

où x est la direction de propagation et z la direction transverse, $w = w_0\sqrt{1 + (x/x_R)^2}$ est le waist du faisceau et $R_c = x[1 + (x_R/x)^2]$ son rayon de courbure. Afin de traiter l'évolution des paramètres w et R_c à travers un système optique, on introduit le paramètre de courbure complexe q [63] :

$$\frac{1}{q} = -\frac{i\lambda_0}{\pi n w^2} + \frac{1}{R_c}, \tag{1.99}$$

qui contient l'information sur le waist $\mathcal{I}[1/q]$ et la courbure $\mathcal{R}[1/q]$ du faisceau. Le paramètre q étant une courbure, on peut appliquer la règle ABCD :

$$q_{out} = \frac{Aq_{in} + B}{Cq_{in} + B}. \tag{1.100}$$

On peut vérifier cette règle en l'appliquant à la propagation libre sur une distance z d'une impulsion gaussienne, où l'on montre directement $q(x) = q_{in} + x$ à partir du système (1.97). En utilisant l'équation (1.99), on en déduit :

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{x}{x_R}\right)^2}, \tag{1.101}$$

$$R_c(z) = x \left[1 + \left(\frac{x_R}{x}\right)^2\right]. \tag{1.102}$$

On retrouve bien le résultat de l'équation (1.98) attendu pour la propagation d'une impulsion gaussienne. Cette méthode est un moyen simple de modéliser un système optique.

1.4.4.2 Matrices de Kostenbauder et couplages spatiotemporels

La généralisation du formalisme matriciel pour rendre compte des couplages spatio-temporels est présenté dans la référence [64]. Pour illustrer la construction d'une matrice permettant cette généralisation, on décrit les paramètres en sortie du système comme des fonctions des paramètres en entrée, soit $x_{out}(x_{in}, \theta_{in})$ et $\theta_{out}(x_{in}, \theta_{in})$. Puisque l'on suppose de faibles déviations de l'angle du faisceau par rapport à la direction de propagation, on peut approcher la position x_{out} et la pente θ_{out} par le premier terme de leur développement en série :

$$x_{out} = \frac{\partial x_{out}}{\partial x_{in}} x_i + \frac{\partial x_f}{\partial \theta_i} \theta_i, \tag{1.103}$$

$$\theta_{out} = \frac{\partial \theta_{out}}{\partial x_{in}} x_{in} + \frac{\partial \theta_{out}}{\partial \theta_{in}} \theta_{in}. \tag{1.104}$$

On peut ainsi identifier les coefficients de la matrice ABCD. On introduit maintenant deux éléments supplémentaires au vecteur décrivant le rayon lumineux. Les variables t_{out} et ν_{out} correspondent respectivement à l'instant et la fréquence en sortie du système. La matrice décrivant un composant optique donné s'écrit alors sous la forme [64] :

$$\begin{pmatrix} z_{out} \\ \theta_{out} \\ t_{out} \\ \nu_{out} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{\partial x_{out}}{\partial x_{in}} & \frac{\partial x_{out}}{\partial \theta_{in}} & \frac{\partial x_{out}}{\partial t_{in}} & \frac{\partial x_{out}}{\partial \nu_{in}} \\ \frac{\partial \theta_{out}}{\partial x_{in}} & \frac{\partial \theta_{out}}{\partial \theta_{in}} & \frac{\partial \theta_{out}}{\partial t_{in}} & \frac{\partial \theta_{out}}{\partial \nu_{in}} \\ \frac{\partial t_{out}}{\partial x_{in}} & \frac{\partial t_{out}}{\partial \theta_{in}} & \frac{\partial t_{out}}{\partial t_{in}} & \frac{\partial t_{out}}{\partial \nu_{in}} \\ \frac{\partial \nu_{out}}{\partial x_{in}} & \frac{\partial \nu_{out}}{\partial \theta_{in}} & \frac{\partial \nu_{out}}{\partial t_{in}} & \frac{\partial \nu_{out}}{\partial \nu_{in}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_{in} \\ \theta_{in} \\ t_{in} \\ \nu_{in} \end{pmatrix}. \tag{1.105}$$

On voit directement que cette matrice de transfert décrit les influences couplées des différentes caractéristiques spatiales (x, θ) et temporelles (t, ν). Le bloc 2×2 du coin supérieur gauche correspond à la matrice ABCD. Puisque l'on considère des composants optiques passifs, on reste dans le cadre de l'optique linéaire. La fréquence d'un rayon ne peut donc être modifiée d'où $\nu_{out} = \nu_{in}$ et chaque élément de la dernière ligne est nul excepté le dernier

qui vaut 1. Enfin, la troisième colonne décrit comment chaque paramètre du faisceau est modifié en fonction de l'instant d'entrée dans le système. Puisque les composants optiques du système sont supposés invariants dans le temps, cette colonne vaut 0 partout et 1 pour le troisième élément. On réécrit usuellement cette matrice sous la forme :

$$K = \begin{pmatrix} A & B & 0 & E \\ C & D & 0 & F \\ G & H & 1 & I \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}. \tag{1.106}$$

Les termes supplémentaires par rapport à la matrice ABCD représentent les couplages spatio-temporels introduit par le système. Leur interprétation est présenté dans le Tableau 1.1. Ces couplages sont exprimés dans l'espace réel (x, y, z, t). Dans le domaine réel, on note que

Paramètre	Notation
Rotation du front d'onde (Spatial Chirp - SPC)	$E = \partial x_{out}/\partial \nu_{in}$
Dispersion angulaire (Angular Chirp - AC)	$F = \partial \theta_{out}/\partial \nu_{in}$
Inclinaison du front d'onde (Pulse Front Tilt - PFT)	$G = \partial t_{out}/\partial x_{in}$
Couplage temps-angle (Time vs Angle - TVA)	$H = \partial t_{out}/\partial \theta_{in}$
Dispersion (Group Delay Dispersion - GDD)	$I = \partial t_{out}/\partial \nu_{in}$

TABLE 1.1 – Couplages spatio-temporels introduit par le système (1.106)

En utilisant l'intégrale de Huygens-Fresnel, Kostenbauder généralise la règle ABCD pour la propagation d'une impulsion ayant la forme générale :

$$E_{in}(x = 0, z, t) \propto \exp\left(\widetilde{Q}_{zz,in} z^2 + 2\widetilde{Q}_{zt,in} zt - \widetilde{Q}_{tt,in} t^2\right), \tag{1.107}$$

à travers un système optique représenté par (1.106). Les caractéristiques de l'impulsion sont définies dans le Tableau 1.2 à partir des coefficients $\widetilde{Q}_{zz}$, $\widetilde{Q}_{zt}$ et $\widetilde{Q}_{tt}$. Il obtient la loi de propagation généralisée pour la matrice Q_{out} en sortie du système K représenté par (1.106) :

$$Q_{out} = \left\{ \begin{pmatrix} A & 0 \\ G & 1 \end{pmatrix} Q_{in} + \begin{pmatrix} B & E/\lambda \\ H & I/\lambda \end{pmatrix} \right\} \cdot \left\{ \begin{pmatrix} C & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} Q_{in} + \begin{pmatrix} D & F/\lambda \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \right\}^{-1}, \tag{1.108}$$

où matrices Q_{in} et Q_{out} ont la forme :

$$Q_{in/out} = i\frac{\lambda}{\pi} \begin{pmatrix} \widetilde{Q}_{zz,in/out} & \widetilde{Q}_{zt,in/out} \\ -\widetilde{Q}_{zt,in/out} & \widetilde{Q}_{tt,in/out} \end{pmatrix}^{-1}. \tag{1.109}$$

On détermine donc le champ E_{out} en sortie du système à partir des équations (1.108) et (1.109), connaissant le champ incident E_{in} donné par l'équation (1.107).

Paramètre	Définition	Unité
Waist	$w = (-\mathcal{R}[\widetilde{Q}_{zz}])^{-1/2}$	μm
Rayon de courbure	$R_c = -\pi/\lambda_0 \mathcal{I}[\widetilde{Q}_{zz}]$	μm
Durée	$\tau = \mathcal{R}[\widetilde{Q}_{tt}]^{-1/2}$	fs
Chirp temporel	$\beta = -\mathcal{I}[\widetilde{Q}_{tt}]$	fs^{-2}
Inclinaison du front d'onde	$PFT = \mathcal{R}[\widetilde{Q}_{zt}]/\mathcal{R}[\widetilde{Q}_{tt}]$	fs μm^{-1}
Rotation du front d'onde	$WFR = -\mathcal{I}[\widetilde{Q}_{zt}]$	fs^{-1} μm^{-1}

TABLE 1.2 – Définition des caractéristiques de l'impulsion décrite par le champ (1.107).

1.5 Mise en forme spatio-temporelle des impulsions

De manière générale, la mise en forme des impulsions désigne le contrôle de la distribution spatiale et temporelle de l'intensité laser. Du fait de la non-linéarité de l'interaction laser-diélectrique, le volume d'absorption, la forme des structures et l'énergie absorbée peuvent être contrôlés grâce à cette mise en forme. Dans cette section, on présente dans un premier temps la méthode de focalisation spatio-temporelle (*Simultaneous Spatial and Temporal Focusing*, ou SSTF)qui combine ces deux aspect. Dans un second temps, on discutera du régime multi-impulsionnel qui correspond à une mise en forme temporelle de l'énergie laser.

1.5.1 Focalisation spatio-temporelle

Les faisceaux laser présentent généralement uniquement une mise en forme spatiale, où la géométrie de l'impulsion est contrôlée par l'ouverture numérique. Il est également possible d'introduire une mise en forme spatio-temporelle, pour laquelle les extensions spatiale et temporelle de l'impulsion sont couplées. C'est le cas lors de la focalisation spatio-temporelle [62] qui introduit un degré de liberté supplémentaire [65] afin de maîtriser la dynamique de l'interaction et la forme de la structure [66] résultante.

La SSTF fût initialement développée pour la microscopie à deux photons [62]. Elle a été ensuite été proposée pour permettre une meilleure localisation de l'énergie absorbée dans le volume des matériaux diélectrique pendant l'interaction [67]. Elle peut-être réalisée à l'aide de différents systèmes [68]. Un système possible est présenté sur la figure 1.13. Une impulsion gaussienne est réfléchie par un réseau de diffraction, la dispersion angulaire induite, conjuguée à la propagation, entraîne la dispersion spatiale des longueurs d'onde dans la direction transverse (*spatial chirp* ou SPC). La différence de chemins optiques entre les longueurs d'ondes est directement responsable de l'inclinaison du front d'onde, le (*pulse front tilt* ou PFT), et également à sa rotation (*wave-front rotation* ou WFR) compte tenu de l'évolution simultanée de la dispersion spatiale et de la durée de l'impulsion en présence d'un front d'onde incliné. La différence de chemins optiques entre les longueurs d'ondes entraîne également un déphasage temporel entre ces dernières, qui, combiné à la dispersion spatiale des fréquences, se traduit par leur dispersion temporelle (*temporal chirp* temporel ou TC). En résumé, la dispersion angulaire induite par le réseau de diffraction donne lieu à l'ensemble des

couplages présentées dans la sous-section 1.4.4 : dispersion spatiale en fréquence, dispersion temporelle en fréquence et inclinaison du front d'onde.

L'impulsion atteint ensuite une première lentille L_1 de longue distance focale visant à la collimater. Le diamètre du faisceau est alors maintenu constant, mais la réduction de la largeur spectrale continue progressivement, et avec elle l'augmentation de la durée de l'impulsion. Le PFT s'efface alors progressivement. L'impulsion au niveau de la lentille L_2 correspond alors à une impulsion gaussienne présentant uniquement un SPC et un TC, avec une durée accrue par rapport à l'impulsion d'entrée. Enfin, la focalisation vers le plan focal de la lentille L_2 conduit au recouvrement progressif des longueurs d'onde, conduisant à la diminution de la durée de l'impulsion, au développement du PFT et à sa rotation. La présence du PFT dans le plan focal de la lentille de focalisation est une propriété intrinsèque de la SSTF, et ne peut pas être compensée par l'introduction d'un PFT en entrée du système [69].

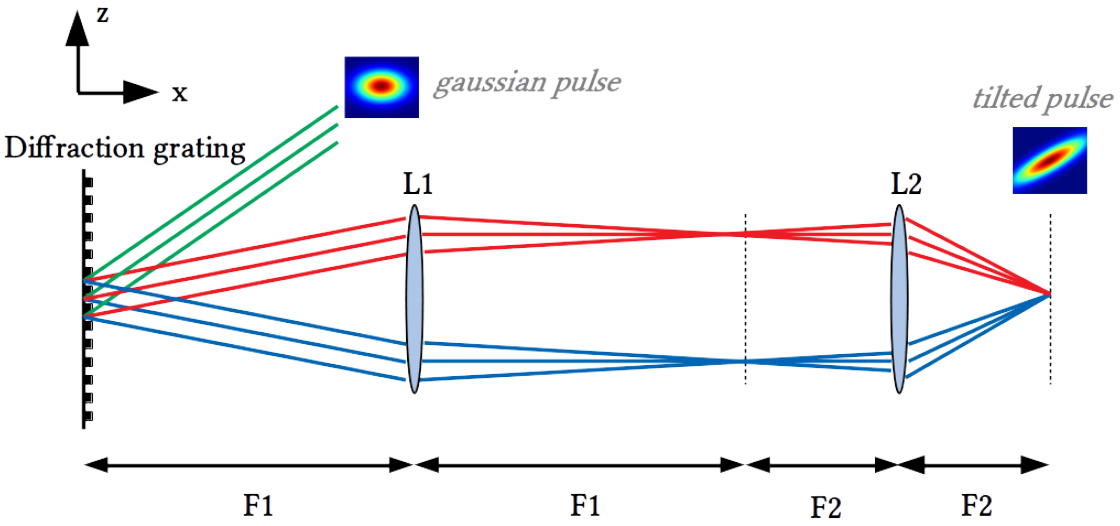

FIGURE 1.13 – Dispositif type téléscope pour la focalisation spatio-temporelle.

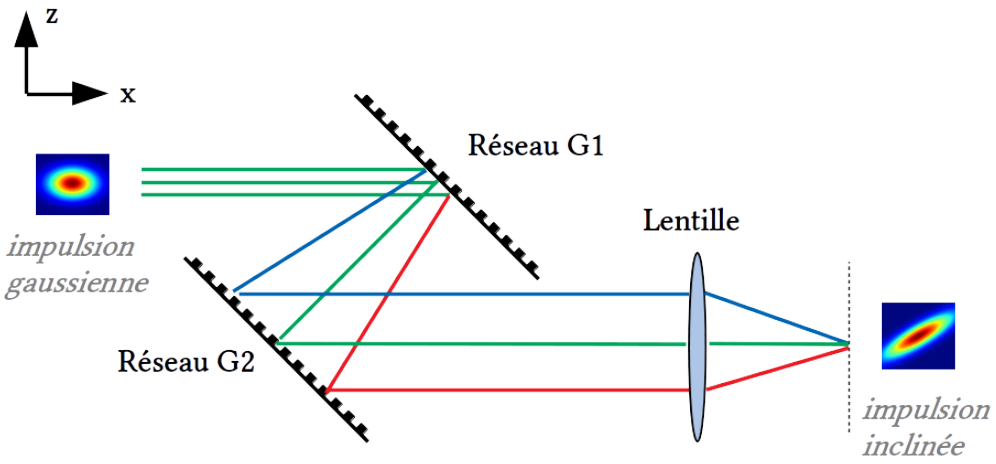

FIGURE 1.14 – Dispositif type compresseur pour la focalisation spatio-temporelle

.

Notons que le système ici présenté, basé sur un télescope, est en principe utilisé pour l'imagerie plutôt que la structuration de matériau [68]. Il présente cependant un intérêt afin d'illustrer de manière simple et intuitive le principe de la focalisation spatio-temporelle. Le système le plus couramment utilisé repose sur un compresseur (voir Fig. 1.14), et est obtenu en remplaçant la lentille L_1 par un second réseau de diffraction.

La SSTF influence la forme et la symétrie du dépôt d'énergie dans le matériau [38]. Les études actuelles semblent indiquer que le PFT est l'origine principale de l'asymétrie des structures dans les conditions laser habituelles [38], bien que le WFR puisse avoir un rôle non négligeable. Notons cependant que lors des expériences, le PFT et le WFR sont parfois négligés dans l'interprétation de la forme finale des structures, où seule la focalisation temporelle est considérée [70, 71]. La figure 1.15 présente une structure asymétrique obtenue par focalisation spatio-temporelle. Actuellement, ce type de géométrie n'a pas été reproduit ni expliqué par les modèles théoriques. On notera finalement que l'asymétrie des impulsions

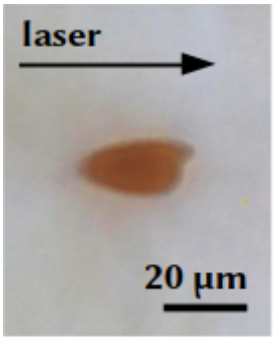

FIGURE 1.15 – Exemple de structure asymétrique obtenue lors d'une expérience de focalisation spatio-temporelle [70]. Dans leur étude, le modèle employé par les auteurs ne permet pas de discuter la présence de cette asymétrie.

à dérive spatiale en fréquence cause également une anisotropie des structures inscrites, en fonction de la direction de déplacement de l'échantillon irradié par de multiples impulsions [65]. Un déplacement dans la direction du front d'onde entraîne des structures en formes de chevrons, un déplacement dans la direction opposée entraîne des structures conventionnelles [72]. Ce phénomène est appelé inscription non-réciproque.

1.5.2 Régime multi-impulsionnel

Avant de détailler les avantages du régime multi-impulsionnel, il est nécessaire de définir les notions de train et de rafales (ou burst en anglais) d'impulsions, qui correspondent à des méthodes de génération différentes. Les trains d'impulsion réfèrent à de multiples impulsions obtenus par des laser à pulsations répétitives avec un délai constant. Selon la méthode de génération des impulsions, les taux de répétition laser sont assez variables. Pour la structuration des matériaux, les taux de répétitions varient de 100 kHz à 100 GHz [58, 73, 74, 75]. Les bursts sont générés par des laser à pulsations en rafales. Ils correspondent typiquement

à une succession de quelques dizaines de sous-impulsions très rapprochées temporellement, l'ensemble de ces impulsions pouvant être considérées comme l'impulsion principale. Le délai entre deux sous-impulsions détermine le taux de répétition intra-burst. Les sous-impulsions peuvent éventuellement présenter des caractéristiques et un espacement temporel variable. Leurs énergies peuvent par exemple être ajustées individuellement selon l'objectif recherché, dessinant ainsi une enveloppe temporelle au sein du burst [76]. Il est possible de générer une succession de bursts avec un très bref délai entre les sous-impulsions (nanoseconde à picoseconde), eux-mêmes espacés par un délai inter-burst plus important de quelques millisecondes ou microsecondes.

L'utilisation de trains d'impulsions laser avec une haute cadence de répétition est largement répandue. Tout comme la réduction de la durée de l'impulsion permet un endommagement plus régulier, l'irradiation par de multiples impulsions peut significativement augmenter le dépôt d'énergie dans le matériau [73]. Comme on l'a vu dans la section 1.2, les matériaux diélectriques possèdent une faible conductivité thermique permettant potentiellement l'accumulation d'énergie laser impulsion après impulsion. Pour que cette accumulation soit efficace, la longueur de diffusion thermique pendant une durée T correspondant à l'intervalle de temps entre deux impulsions successives doit être nettement inférieure à la dimension caractéristique du dépôt d'énergie. Pour une efficacité encore accrue, la durée totale d'irradiation par l'ensemble des impulsions doit elle-même correspondre à une longueur de diffusion inférieure à la dimension de la structure. La durée entre deux impulsions et la durée totale d'irradiation sont donc liés à la résolution spatiale des structures. La longueur de diffusion sur cette durée est $l_{th} = \sqrt{DT}$, avec une diffusivité thermique $D \simeq 10^{-6}$ m^{2}s^{-1} pour la silice, pour des températures allant jusqu'à 2800 K [46]. La figure 1.16 présente l'évolution de la longueur de diffusion thermique en fonction de la durée d'irradiation T. Pour $T = 1$ ms, la longueur est d'environ 30 μm, et diminue à environ 1 μm pour $T = 1$ μs. Des taux de répétition kHz ou MHz peuvent donc être adaptés pour former des structures d'une dizaine de μm ou plus. Pour les durées $T = 1$ ns et $T = 1$ ps, cette longueur chute respectivement à 200 nm et 1 nm. Une accumulation d'énergie à une échelle micrométrique voire sub-micrométrique est donc atteignable pour de tels délais.

Notons également que la dispersion de l'énergie peut également s'effectuer par relaxation hydrodynamique en plus de la diffusion thermique, avec une durée caractéristique de l'ordre de la nanoseconde [77]. Les burst d'impulsions avec un délai inférieur à la nanoseconde permettent donc d'accumuler l'énergie avant même que ce processus n'entre en jeu. De tels taux de répétition sont également plus court que le temps de relaxation des excitons autopiégés. On attend donc un effet d'accumulation de ces états impulsion après impulsion, qui contribueront eux-mêmes à l'excitation des électrons dans le matériau et donc au chauffage du réseau.

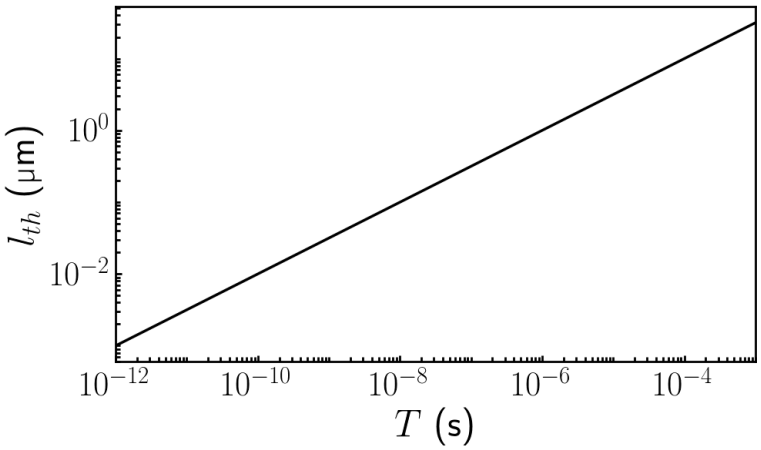

FIGURE 1.16 – Évolution de la longueur de diffusion thermique dans la silice en fonction de la durée T, correspondant à une durée d'irradiation.

1.6 Synthèse

Nous avons parcouru les processus devant être pris en compte pour la description de l'interaction laser diélectrique, en particulier pour des impulsions femtosecondes, modérément focalisées et d'intensité proche du seuil d'interaction. Quatre aspects principaux ont été étudiés : la dynamique électronique sous champ laser et le chauffage du réseau, les propriétés optiques du matériau sous champ laser et l'influence de l'état thermodynamique, la propagation non-linéaire de l'impulsion au sein d'un matériau excité, et enfin la mise en forme spatiale et temporelle des impulsions laser. La section 1.2 a d'abord présenté le phénomène de photoionisation, origine de la non-linéarité de l'interaction laser-diélectrique, le chauffage des électrons, la recombinaison et la formation des défauts dans le matériau, l'ionisation par impact et le chauffage du matériau. Dans la section 1.3, la fonction diélectrique a été établie d'après le modèle de Drude prenant en compte l'influence des électrons de conduction, et d'après le modèle de Lorentz prenant en compte les électrons de valence et les défauts. On y a également vu le rôle de la température et la densité sur l'indice optique pour un chauffage modéré du matériau. Afin de décrire la propagation d'une impulsions laser, les équations de Maxwell ont été introduites dans la section 1.4, et avec elles la polarisation non-linéaire responsable des effets non-linéaires. L'équation de Schrödinger non-linéaire a été présentée comme un modèle de propagation adapté à des conditions laser modérées et moins coûteux numériquement que les équations de Maxwell. Le cas particulier de la propagation linéaire et la notion de couplage spatio-temporel ont été abordés, notamment à travers le formalisme de l'optique matricielle. Enfin, la section 1.5 a traité la problématique de la mise en forme de la distribution spatiale et temporelle de l'énergie laser. La méthode de focalisation spatio-temporelle y a été présentée, puis les spécificités du régime multi-impulsionnel. Sur la base de ces éléments, nous allons présenter dans ce qui suit des travaux originaux portant sur la focalisation spatiale et temporelle d'impulsions laser dans la silice dans le Chapitre 2, puis l'interaction de multiples impulsions successives avec la silice dans le Chapitre 3.

Références

[1] N. W. Ashcroft et N. D. Mermin. *Solid State Physics*. Saunders College Publishing. 1976.

[2] Charles A. Harper. *HANDBOOK OF CERAMICS, GLASSES, AND DIAMONDS*. McGraw-Hill, avr. 2001.

[3] F. Quéré, S. Guizard, P. Martin, G. Petite, O. Gobert, P. Meynadier et M. Perdrix. "Ultrafast carrier dynamics in laser-excited materials : subpicosecond optical studies". In : *Applied Physics B* 68.3 (mars 1999), p. 459-463.

[4] J. Olivier et R. Poirier. "Electronic structure of Al2O3 from electron energy loss spectroscopy". In : *Surface Science* 105.1 (avr. 1981), p. 347-356.

[5] L. Sudrie, A. Couairon, M. Franco, B. Lamouroux, B. Prade, S. Tzortzakis et A. Mysyrowicz. "Femtosecond Laser-Induced Damage and Filamentary Propagation in Fused Silica". In : *Physical Review Letters* 89.18 (oct. 2002), p. 186601.

[6] B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore et M. D. Perry. "Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics". In : *Physical Review B* 53.4 (jan. 1996), p. 1749-1761.

[7] Chris B. Schaffer, Nozomi Nishimura, Eli N. Glezer, Albert M.-T. Kim et Eric Mazur. "Dynamics of femtosecond laser-induced breakdown in water from femtoseconds to microseconds". In : *Optics Express* 10.3 (fév. 2002), p. 196-203.

[8] Romain Beuton, Benoît Chimier, Jérôme Breil, David Hébert, Pierre-Henri Maire et Guillaume Duchateau. "Thermo-elasto-plastic simulations of femtosecond laser-induced structural modifications : Application to cavity formation in fused silica". In : *Journal of Applied Physics* 122.20 (nov. 2017), p. 203104.

[9] E. G. Gamaly. "The physics of ultra-short laser interaction with solids at non-relativistic intensities". In : *Physics Reports* 508.4 (nov. 2011), p. 91-243.

[10] L. V. Keldysh. "Ionization in the field of a strong electromagnetic wave". In : *Soviet Physics JETP* 20.5 (1965), p. 1307.

[11] Jeremy R. Gulley. "Frequency dependence in the initiation of ultrafast laser-induced damage". In : *Laser-Induced Damage in Optical Materials : 2010*. T. 7842. International Society for Optics et Photonics, nov. 2010, 78420U.

[12] Antoine Bourgeade et Guillaume Duchateau. "Time-dependent ionization models designed for intense and short laser pulse propagation in dielectric materials". In : *Physical Review. E, Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics* 85.5 Pt 2 (mai 2012), p. 056403.

[13] N. S. Shcheblanov, M. E. Povarnitsyn, P. N. Terekhin, S. Guizard et A. Couairon. "Nonlinear photoionization of transparent solids : A nonperturbative theory obeying selection rules". In : *Physical Review A* 96.6 (déc. 2017), p. 063410.

[14] D. Grojo, M. Gertsvolf, S. Lei, T. Barillot, D. M. Rayner et P. B. Corkum. "Exciton-seeded multiphoton ionization in bulk SiO2". In : *Physical Review B* 81.21 (juin 2010), p. 212301.

[15] Ming Li, Saipriya Menon, John P. Nibarger et George N. Gibson. "Ultrafast Electron Dynamics in Femtosecond Optical Breakdown of Dielectrics". In : *Physical Review Letters* 82.11 (mars 1999), p. 2394-2397.

[16] G. Petite. "Mécanismes fondamentaux de l'ablation laserfemtoseconde en "flux intermédiaire"". In : (2005).

[17] Francois Courvoisier. "Ultrafast Laser Micro-Nano Structuring of Transparent Materials with High Aspect Ratio". In : *Handbook of Laser Micro- and Nano-Engineering*. Sous la dir. de Koji Sugioka. Springer International Publishing, 2020, p. 1-37.

[18] Lan Jiang et Hai-Lung Tsai. "A plasma model combined with an improved two-temperature equation for ultrafast laser ablation of dielectrics". In : *Journal of Applied Physics* 104.9 (nov. 2008), p. 093101.

[19] D. Arnold, E. Cartier et D. J. DiMaria. "Theory of high-field electron transport and impact ionization in silicon dioxide". In : *Physical Review B* 49.15 (avr. 1994), p. 10278-10297.

[20] P. Balling et J. Schou. "Femtosecond-laser ablation dynamics of dielectrics : basics and applications for thin films". In : *Reports on Progress in Physics* 76.3 (fév. 2013), p. 036502.

[21] Alexander Q. Wu, Ihtesham H. Chowdhury et Xianfan Xu. "Femtosecond laser absorption in fused silica : Numerical and experimental investigation". In : *Physical Review B* 72.8 (août 2005), p. 085128.

[22] A. Pineau, B. Chimier, S. X. Hu et G. Duchateau. "Modeling the electron collision frequency during solid-to-plasma transition of polystyrene ablator for direct-drive inertial confinement fusion applications". In : *Physics of Plasmas* 27.9 (sept. 2020), p. 092703.

[23] B. Chimier, O. Utéza, N. Sanner, M. Sentis, T. Itina, P. Lassonde, F. Légaré, F. Vidal et J. C. Kieffer. "Damage and ablation thresholds of fused-silica in femtosecond regime". In : *Physical Review B* 84.9 (sept. 2011), p. 094104.

[24] H. X. Deng, X. Xiang, W. G. Zheng, X. D. Yuan, S. Y. Wu, X. D. Jiang, F. Gao, X. T. Zu et K. Sun. "Theory of absorption rate of carriers in fused silica under intense laser irradiation". In : *Journal of Applied Physics* 108.10 (nov. 2010), p. 103116.

[25] Patrick Mora. "Theoretical model of absorption of laser light by a plasma". In : *The Physics of Fluids* 25.6 (juin 1982), p. 1051-1056.

[26] M. D. Perry, B. C. Stuart, P. S. Banks, M. D. Feit, V. Yanovsky et A. M. Rubenchik. "Ultrashort-pulse laser machining of dielectric materials". In : *Journal of Applied Physics* 85.9 (avr. 1999), p. 6803.

[27] A. Kaiser, B. Rethfeld, M. Vicanek et G. Simon. "Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses". In : *Physical Review B* 61.17 (mai 2000), p. 11437-11450.

[28] Nikita S. Shcheblanov, Elena P. Silaeva et Tatiana E. Itina. "Electronic excitation and relaxation processes in wide band gap dielectric materials in the transition

region of the Keldysh parameter". In : *Applied Surface Science* 258 (sept. 2012), p. 9417-9420.

[29] B. Rethfeld. "Free-electron generation in laser-irradiated dielectrics". In : *Physical Review B* 73.3 (jan. 2006), p. 035101.

[30] G. Doumy, F. Quéré, O. Gobert, M. Perdrix, Ph. Martin, P. Audebert, J. C. Gauthier, J.-P. Geindre et T. Wittmann. "Complete characterization of a plasma mirror for the production of high-contrast ultraintense laser pulses". In : *Physical Review E* 69.2 (fév. 2004), p. 026402.

[31] M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, Z. Cheng, Ch. Spielmann, G. Mourou, W. Kautek et F. Krausz. "Femtosecond Optical Breakdown in Dielectrics". In : *Physical Review Letters* 80.18 (mai 1998), p. 4076-4079.

[32] J. R. Peñano, P. Sprangle, B. Hafizi, W. Manheimer et A. Zigler. "Transmission of intense femtosecond laser pulses into dielectrics". In : *Physical Review E* 72.3 (sept. 2005), p. 036412.

[33] S. Guizard, P. Martin, Ph Daguzan, G. Petite, P. Audebert, J. P. Geindre, A. Dos Santos et A. Antonnetti. "Contrasted Behaviour of an Electron Gas in MgO, Al 2 O 3 and SiO 2". In : *Europhysics Letters (EPL)* 29.5 (fév. 1995), p. 401-406.

[34] P. P. Rajeev, M. Gertsvolf, E. Simova, C. Hnatovsky, R. S. Taylor, V. R. Bhardwaj, D. M. Rayner et P. B. Corkum. "Memory in Nonlinear Ionization of Transparent Solids". In : *Physical Review Letters* 97.25 (déc. 2006), p. 253001.

[35] A. J. Fisher, W. Hayes et A. M. Stoneham. "Structure of the self-trapped exciton in quartz". In : *Physical Review Letters* 64.22 (mai 1990), p. 2667-2670.

[36] Dirk Wortmann, Mark Ramme et Jens Gottmann. "Refractive index modification using fs-laser double pulses". In : *Optics Express* 15.16 (août 2007), p. 10149-10153.

[37] Sören Richter, Fei Jia, Matthias Heinrich, Sven Döring, Ulf Peschel, Andreas Tünnermann et Stefan Nolte. "The role of self-trapped excitons and defects in the formation of nanogratings in fused silica". In : *Optics Letters* 37.4 (fév. 2012), p. 482-484.

[38] Vladimir P. Zhukov, Selcuk Akturk et Nadezhda M. Bulgakova. "Asymmetric interactions induced by spatio-temporal couplings of femtosecond laser pulses in transparent media". In : *JOSA B* 36.6 (juin 2019), p. 1556-1564.

[39] Han Wang et Hong Shen. "A Prediction Model for Ablation Fluence Threshold in Femtosecond Laser Processing of Fused Silica". In : *Journal of Micro and Nano-Manufacturing* 5.031006 (juin 2017).

[40] Jonathan B. Ashcom, Rafael R. Gattass, Chris B. Schaffer et Eric Mazur. "Numerical aperture dependence of damage and supercontinuum generation from femtosecond laser pulses in bulk fused silica". In : *JOSA B* 23.11 (nov. 2006), p. 2317-2322.

[41] Baerbel Rethfeld, Dmitriy S. Ivanov, Martin E. Garcia et Sergei I. Anisimov. "Modelling ultrafast laser ablation". In : *Journal of Physics D : Applied Physics* 50.19 (2017), p. 193001.

[42] R. Beuton, B. Chimier, P. Quinoman, P. González Alaiza de Martínez, R. Nuter et G. Duchateau. “Numerical studies of dielectric material modifications by a femtosecond Bessel–Gauss laser beam”. In : *Applied Physics A* 127.5 (avr. 2021), p. 334.

[43] I.M. Burakov, N.M. Bulgakova, R. Stoian, A. Rosenfeld et I.V. Hertel. “Theoretical investigations of material modification using temporally shaped femtosecond laser pulses”. In : *Applied Physics A* 81.8 (déc. 2005), p. 1639-1645.

[44] Lan Jiang et Hai-Lung Tsai. “Improved Two-Temperature Model and Its Application in Ultrashort Laser Heating of Metal Films”. In : *Journal of Heat Transfer* 127.10 (juin 2005), p. 1167-1173.

[45] Patrick Combis, Philippe Cormont, Laurent Gallais, David Hebert, Lucile Robin et Jean-Luc Rullier. “Evaluation of the fused silica thermal conductivity by comparing infrared thermometry measurements with two-dimensional simulations”. In : *Applied Physics Letters* 101.21 (nov. 2012), p. 211908.

[46] Steven T. Yang, Manyalibo J. Matthews, Selim Elhadj, Vaughn G. Draggoo et Scott E. Bisson. “Thermal transport in CO2 laser irradiated fused silica : In situ measurements and analysis”. In : *Journal of Applied Physics* 106.10 (nov. 2009), p. 103106.

[47] S.S. Mao, F. Quéré, S. Guizard, X. Mao, R.E. Russo, G. Petite et P. Martin. “Dynamics of femtosecond laser interactions with dielectrics”. In : *Applied Physics A* 79.7 (nov. 2004), p. 1695-1709.

[48] A. Bildé, K. Redeckas, A. Melninkaitis, M. Vengris et S. Guizard. “Time resolved study of carrier relaxation dynamics in $\upalpha$-Al2O3”. In : *Journal of Physics : Condensed Matter* 33.31 (juin 2021). Publisher : IOP Publishing, p. 315402.

[49] M. H. Mahdieh et M. Akbari Jafarabadi. “Optical characterization of thermal lens effect in ethanol and the influence of focusing lens and liquid cell size”. In : *Optics & Laser Technology* 44.1 (fév. 2012), p. 78-82.

[50] Roy M. Waxler et G. W. Cleek. “The Effect of Temperature and Pressure on the Refractive Index of Some Oxide Glasses”. In : *Journal of Research of the National Bureau of Standards. Section A, Physics and Chemistry* 77A.6 (déc. 1973), p. 755.

[51] Konstantin Mishchik. “Ultrafast laser-induced modification of optical glasses : a spectroscopy insight into the microscopic mechanisms”. Thèse de doct. Université Jean Monnet - Saint-Etienne, juill. 2012.

[52] Dr R. S. Krishnan. *Progress in Crystal Physics, Volume 1*. Interscience Publishers, jan. 1958.

[53] ARNOLD Sommerfeld. “CHAPTER III - THEORY OF DISPERSION”. In : *Optics*. Sous la dir. d’ARNOLD Sommerfeld. Academic Press, jan. 1964, p. 88-128.

[54] C. Z. Tan et J. Arndt. “The mean polarizability and density of glasses”. In : *Physica B : Condensed Matter* 229.3 (mars 1997), p. 217-224.

[55] C. Z. Tan, J. Arndt et H. S. Xie. “Optical properties of densified silica glasses”. In : *Physica B : Condensed Matter* 252.1 (juill. 1998), p. 28-33.

[56] C. Z. Tan et J. Arndt. "Temperature dependence of refractive index of glassy SiO2 in the infrared wavelength range". In : *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 61.8 (août 2000), p. 1315-1320.

[57] R. W. Boyd. *Nonlinear Optics, Third Edition*. USA : Academic Press, Inc., 2008.

[58] O. Dematteo Caulier, K. Mishchik, B. Chimier, S. Skupin, A. Bourgeade, C. Javaux Léger, R. Kling, C. Hönninger, J. Lopez, V. Tikhonchuk et G. Duchateau. "Femtosecond laser pulse train interaction with dielectric materials". In : *Applied Physics Letters* 107 (nov. 2015), p. 181110.

[59] L. Bergé, S. Skupin, R. Nuter, J. Kasparian et J.-P. Wolf. "Ultrashort filaments of light in weakly ionized, optically transparent media". In : *Reports on Progress in Physics* 70.10 (2007), p. 1633.

[60] A. Couairon, E. Brambilla, T. Corti, D. Majus, O. de J. Ramírez-Góngora et M. Kolesik. "Practitioner's guide to laser pulse propagation models and simulation". In : *The European Physical Journal Special Topics* 199.1 (nov. 2011), p. 5-76.

[61] Rüdiger Paschotta. *Encyclopedia of Laser Physics and Technology*. Anglais. Wiley-VCH Verlag GmbH, 2008.

[62] Guanghao Zhu, James van Howe, Michael Durst, Warren Zipfel et Chris Xu. "Simultaneous spatial and temporal focusing of femtosecond pulses". In : *Optics Express* 13.6 (mars 2005), p. 2153-2159.

[63] A Gerrard et J. M. Burch. *Introduction to Matrix Methods in Optics*. John Willey & Sons. London, 1975.

[64] A. G. Kostenbauder. "Ray-pulse matrices : a rational treatment for dispersive optical systems". In : *IEEE Journal of Quantum Electronics* 26.6 (juin 1990), p. 1148-1157.

[65] Aabid Patel, Yuri Svirko, Charles Durfee et Peter G. Kazansky. "Direct Writing with Tilted-Front Femtosecond Pulses". In : *Scientific Reports* 7.1 (oct. 2017), p. 1-14.

[66] Fei He, Bin Zeng, Wei Chu, Jielei Ni, Koji Sugioka, Ya Cheng et Charles G. Durfee. "Characterization and control of peak intensity distribution at the focus of a spatiotemporally focused femtosecond laser beam". In : *Optics Express* 22.8 (avr. 2014), p. 9734-9748.

[67] Robert Kammel, Klaus Bergner, Jens Thomas, Roland Ackermann, Stefan Skupin et Stefan Nolte. "Simultaneous spatial and temporal focusing : a route towards confined nonlinear materials processing". In : *Laser-based Micro- and Nanoprocessing X*. T. 9736. International Society for Optics et Photonics, mars 2016, 97360T.

[68] Charles G. Durfee, Michael Greco, Erica Block, Dawn Vitek et Jeff A. Squier. "Intuitive analysis of space-time focusing with double-ABCD calculation". In : *Optics Express* 20.13 (juin 2012), p. 14244-14259.

[69] Site Zhang, Daniel Asoubar, Robert Kammel, Stefan Nolte et Frank Wyrowski. "Analysis of pulse front tilt in simultaneous spatial and temporal focusing". In : *JOSA A* 31.11 (nov. 2014), p. 2437-2446.

[70] Fei He, Ya Cheng, Jintian Lin, Jielei Ni, Zhizhan Xu, Koji Sugioka et Katsumi Midorikawa. "Independent control of aspect ratios in the axial and lateral cross sections of a focal spot for three-dimensional femtosecond laser micromachining". In : *New Journal of Physics* 13.8 (août 2011), p. 083014.

[71] Fei He, Zhaohui Wang, Bin Zeng, Jielei Ni, Wei Chu, Koji Sugioka et Ya Cheng. "Three-dimensional patterning in transparent materials with spatiotemporally-focused femtosecond laser pulses". In : *Optoelectronic Imaging and Multimedia Technology III*. T. 9273. International Society for Optics et Photonics, oct. 2014, p. 927316.

[72] Dawn N. Vitek, Erica Block, Yves Bellouard, Daniel E. Adams, Sterling Backus, David Kleinfeld, Charles G. Durfee et Jeffrey A. Squier. "Spatio-temporally focused femtosecond laser pulses for nonreciprocal writing in optically transparent materials". In : *Optics Express* 18.24 (nov. 2010), p. 24673-24678. issn : 1094-4087. doi : 10.1364/OE.18.024673.

[73] K. Mishchik, R. Beuton, O. Dematteo Caulier, S. Skupin, B. Chimier, G. Duchateau, B. Chassagne, R. Kling, C. Hönninger, E. Mottay et J. Lopez. "Improved laser glass cutting by spatio-temporal control of energy deposition using bursts of femtosecond pulses". In : *Optics Express* 25.26 (déc. 2017), p. 33271-33282.

[74] Caterina Gaudiuso, Giuseppe Giannuzzi, Annalisa Volpe, Pietro Mario Lugarà, Isabelle Choquet et Antonio Ancona. "Incubation during laser ablation with bursts of femtosecond pulses with picosecond delays". In : *Optics Express* 26.4 (fév. 2018), p. 3801-3813.

[75] Guillaume Bonamis, Konstantin Mishchick, Eric Audouard, Clemens Hönninger, Eric Mottay, John Lopez et Inka Manek-Hönninger. "High efficiency femtosecond laser ablation with gigahertz level bursts". In : *Journal of Laser Applications* 31.2 (mai 2019), p. 022205.

[76] Minming Nie, Xueze Cao, Qianag Liu, Encai Ji et Xing Fu. "100 µJ pulse energy in burst-mode-operated hybrid fiber-bulk amplifier system with envelope shaping". In : *Optics Express* 25.12 (juin 2017), p. 13557-13566.

[77] Nadezhda M. Bulgakova, Vladimir P. Zhukov, Svetlana V. Sonina et Yuri P. Meshcheryakov. "Modification of transparent materials with ultrashort laser pulses : What is energetically and mechanically meaningful ?" In : *Journal of Applied Physics* 118.23 (déc. 2015), p. 233108.

Chapitre 2

Focalisation spatio-temporelle dans la silice fondue

Sommaire

2.1 Motivation et cadre de l'étude 64

2.2 Caractéristiques d'une impulsion spatialement et temporellement focalisée 65

2.2.1 Configuration pour la focalisation saptio-temporelle 66

2.2.2 Résolution de l'équation de propagation 71

2.2.3 Évolution des caractéristiques de l'impulsion lors de la propagation 72

2.3 Simulation de l'interaction d'une impulsion focalisée spatialement et temporellement dans la silice 79

2.3.1 Code ARCTIC et paramètres des simulations 79

2.3.2 Dépôt d'énergie et dynamique électronique 81

2.3.3 Contrôle du rapport d'aspect des structures 88

2.4 Synthèse 92

Références 95

2.1 Motivation et cadre de l'étude

Le principe et les applications de la focalisation spatio-temporelle ont été présentés dans l'introduction générale de ce travail. Cette méthode consiste à étirer une impulsion laser en introduisant une dérive en fréquence dans une direction transverse à la propagation, puis à la focaliser dans le matériau. Le recouvrement des longueurs d'onde lors de la focalisation entraîne une diminution progressive de la durée d'impulsion, qui sera minimale au point focal (voir Fig. 2.1). Cette focalisation temporelle de la durée constitue un degré de liberté supplémentaire pour effectuer un dépôt d'énergie localisé.

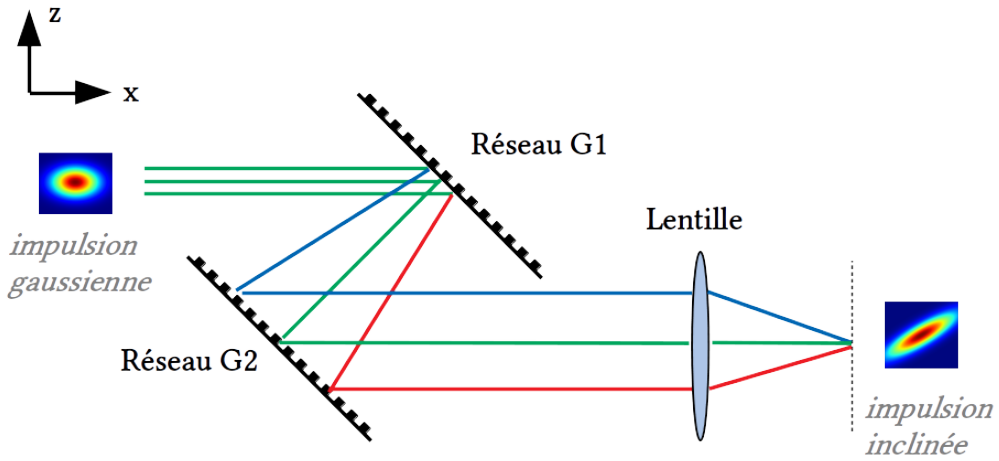

FIGURE 2.1 – Dispositif type compresseur pour la focalisation spatio-temporelle

.

La focalisation temporelle introduit une plus forte variation de l'intensité aux alentours du plan focal. Pour une impulsion focalisée dans le volume du matériau, l'intensité seuil de modification du matériau est donc atteinte plus proche du plan focal pouvant permettre une meilleure localisation du dépôt d'énergie [1]. L'évolution longitudinale de la durée a également été utilisée par He *et al.* afin de contrôler le rapport d'aspect des structures [2]. Cependant, la présence d'un PFT est généralement négligée lors de l'évaluation du rapport d'aspect ou de l'interprétation de certaines géométries atypiques obtenues expérimentalement.

Peu d'études existent concernant la modélisation de la propagation et l'interaction d'impulsions à dérive spatiale en fréquence. La propagation de telles impulsions a été modélisée à partir d'une équation de Schrödinger Non-Linéaire 3D [3], valide uniquement pour de faibles angles de propagation et de déflexion du faisceau laser (approximation paraxiale) et pour une densité électronique modérée (inférieure à la densité critique). L'étude met en évidence l'influence de la rotation du front d'onde (wavefront rotation ou WFR) sur la symétrie des structures et sur le processus d'inscription non-réciproque. Une étude basée sur la résolution des équations de Maxwell en deux dimensions a également été menée [4]. Cette méthode permet une interprétation qualitative de l'interaction, bien que la bi-dimensionnalité du problème affecte l'évolution spatio-temporelle de l'intensité laser, et par conséquent l'absorption

laser et le dépôt d'énergie dans le matériau. Cette étude a identifié le PFT comme l'origine première de l'asymétrie de l'interaction des impulsions à dérive spatiale en fréquence dans les matériaux diélectriques. Cette étude souligne le rôle prépondérant du PFT dans l'interaction asymétrique par rapport au WFR.

Ce chapitre vise à modéliser l'interaction d'une impulsion spatialement et temporellement focalisée dans la silice. Afin d'aller au delà des études existantes, les équations de Maxwell à trois dimensions sont couplées à la dynamique électronique pour modéliser la propagation de l'impulsion à travers le matériau et son interaction avec celui-ci. Le PFT a été identifié comme la cause première de l'asymétrie et constitue de plus une propriété inhérente de l'impulsion dans le plan focal. Il semble donc pertinent d'étudier son influence sur la dynamique électronique, l'absorption de l'énergie et la géométrie de la structure inscrite.

On s'intéressera dans la première partie aux caractéristiques d'une impulsion focalisée spatialement et temporellement. On décrira d'abord le processus de mise en forme de l'impulsion laser au sein d'un système optique. On établira l'évolution de l'impulsion laser au sein d'un système optique pour la focalisation spatio-temporelle à l'aide du formalisme matriciel de Kostenbauder [5]. À partir des données disponibles dans la littérature, une configuration laser d'intérêt sera identifiée pour mettre en évidence l'influence du PFT. On résoudra ensuite l'équation paraxiale pour cette configuration et on présentera les caractéristiques de l'impulsion depuis la lentille jusqu'à son plan focal. Dans la seconde partie, on réalisera la simulation numérique de l'interaction d'une impulsion à dérive spatiale en fréquence à l'aide du code ARCTIC. On présentera d'abord succinctement le code ARCTIC ainsi que l'ensemble des paramètres choisis. On interprétera à partir de la dynamique électronique les dépôts d'énergie dans le matériau, obtenus pour diverses valeurs de l'énergie de l'impulsion et du PFT. Finalement, on démontrera le contrôle de la géométrie des structures à partir du PFT.

2.2 Caractéristiques d'une impulsion spatialement et temporellement focalisée

Cette section présente les caractéristiques d'une impulsion laser avec dérive spatiale en fréquence. On rappellera le principe de la SSTF et on déterminera une configuration pertinente pour discriminer l'influence du PFT, en s'appuyant sur les données de la littérature et sur l'optique matricielle. L'évolution spatio-temporelle du champ électrique correspondant sera ensuite obtenue par résolution de l'équation paraxiale (voir l'Eq. (1.87), et vérifiée via le formalisme matriciel de Kostenbauder. On présentera finalement quelques caractéristiques représentatives de ces impulsions, dont l'évolution de la durée de l'impulsion, les profils spatio-temporels de l'intensité et la distribution spatiale de la fluence.

2.2.1 Configuration pour la focalisation saptio-temporelle

Les expériences de SSTF peuvent se révéler complexes à analyser en raison de la présence de nombreux couplages spatio-temporels et de leur inter-dépendance (ces couplages sont définis dans la section 1.4.4.2). Le choix d'une configuration laser est un point essentiel pour discriminer l'influence d'un paramètre donné. Le principe de la SSTF et l'apparition des couplages pour un système optique donné ont été présentés dans la section 1.5.1. On s'appuiera ici sur les travaux théoriques existants pour dégager un cas d'intérêt pour l'étude du PFT. On vérifiera la pertinence physique de la configuration proposée en modélisant le système optique grâce au formalisme de Kostenbauder [5].

2.2.1.1 Description de l'impulsion laser d'après les données de la littérature

Dans les études portant sur l'interaction entre une impulsion avec dérive spatiale en fréquence et un matériau, l'impulsion laser est généralement définie au niveau de la lentille de focalisation (lentille sur la figure 2.1) [4, 6]. En s'appuyant sur les données de la littérature, on peut obtenir directement la forme du champ dans le plan focal qui sera introduit dans ARCTIC, et pourra être utilisée pour résoudre l'équation de propagation.

L'impulsion généralement considérée présente initialement une dérive spatiale en fréquence (spatial chirp ou SPC en anglais) pour seul couplage spatio-temporel. Dans le domaine spatio-spectral (x, y, z, ω) et au niveau de la lentille de focalisation ($x = x_L$, avec x l'axe de propagation), l'enveloppe est définie de la manière suivante [7, 8, 9] :

$$E(x = x_L, y, z, \Delta\omega) = E_0 \exp\left[-\frac{\Delta\omega^2}{\Delta\Omega^2} - \frac{(z - \eta\Delta\omega)^2 + y^2}{s^2}\right], \tag{2.1}$$

où $\Delta\omega = \omega - \omega_0$ est le décalage en fréquence à la fréquence centrale ω_0, $\Delta\Omega$ est la largeur spectrale, η décrit le taux de dérive spatiale en fréquence tel que $\eta\Delta\omega$ donne la distance de déplacement de la fréquence ω par rapport au centre du faisceau ($y = z = 0$). La grandeur s est l'extension spatiale d'un faisceau monochromatique de fréquence ω [8]. Notons que cette dernière grandeur est qualifiée de waist du faisceau [7, 9], par abus de langage puisque le waist correspond à l'extension du faisceau dans l'espace réel (x, y, z, t). L'expression du champ dans l'espace réel est obtenue par transformée de Fourier temporelle inverse (voir Annexe B) :

$$E(x = x_L, y, z, t) = \frac{\Delta\Omega E_0}{\sqrt{2}} \exp\left[-\frac{y^2}{s^2} - \frac{z^2}{s^2(1+\beta^2)} - i\frac{\beta^2}{\eta(1+\beta^2)}zt - \frac{\Delta\Omega^2}{4(1+\beta^2)t^2}\right], \tag{2.2}$$

où $\beta = \eta\Delta\Omega/s$ est le taux de dérive spatiale en fréquence adimensionné. Cette expression met en évidence que l'impulsion laser considérée est un faisceau elliptique, de largeurs à mi-hauteurs $w_{y,in} = \sqrt{2\ln 2}s$ dans la direction y et $w_{z,in} = \sqrt{2\ln 2(1+\beta^2)}s$ dans la direction z. En d'autres termes, l'ouverture numérique du faisceau (Eq. (1.94) dans la direction du couplage dépend du SPC initial, ici représenté par β. Comme expliqué au début de cette

sous-section, cette impulsion présente une dérive spatiale en fréquence (terme de couplage réel dans le domaine $(x, y, z, \Delta\omega)$) pour seul couplage spatio-temporel. Pour cette impulsion laser, le SPC dans le domaine (x, y, z, ω) correspond à une rotation du front d'onde dans le domaine (x, y, z, t) [10] (wave-front rotation ou WFR en anglais). Il est important de noter que SPC et WFR correspondent ici au même phénomène mais dans des représentations différentes.

Durfee *et al.* [7] présentent une méthode de propagation afin de déterminer l'évolution des caractéristiques d'une telle impulsion dans le domaine spectral. Pour cela, l'expression (2.1) doit être complétée par la phase individuelle d'un faisceau gaussien monochromatique afin d'obtenir le champ complet $\mathcal{E} = E\exp(-i\phi)$. Cette phase prend la forme :

$$\phi(x, z, y, \Delta\omega) = k_0 x - \arctan(x/x_R) + k_0 \frac{z^2 + y^2}{2R(x)}, \tag{2.3}$$

où le premier terme décrit la propagation dans la direction x, le second est la phase de Gouy et le dernier correspond à la diffraction, avec $R(x)$ le rayon de courbure. L'impulsion est ensuite propagée dans le domaine spatio-spectrale à partir de l'intégrale de Fresnel. Le champ dans le plan focal est [7] :

$$E(x = 0, y, z, \Delta\omega) = A_0 \exp\left[-\frac{y^2}{w_0^2} - \frac{z^2}{w_0^2} - \frac{\Delta\omega^2}{\Delta\Omega^2}\right] \times \exp\left[i\frac{\tau_0\beta}{w_0\omega_0} z\Delta\omega^2 + i\frac{\tau_0\beta}{w_0} z\Delta\omega\right], \tag{2.4}$$

On identifie les distributions gaussiennes du champ dans les deux directions spatiales y et z ainsi que dans l'espace en fréquences ω. Les termes complexes en $z\Delta\omega$ et $z\Delta\omega^2$ correspondent respectivement au *wave-front tilt dispersion* (soit au PFT dans l'espace réel) et à un couplage de deuxième ordre appelé *chirp spectral* [7]. Il est important de noter que ce terme d'ordre deux est responsable de la focalisation temporelle à proprement parler, c'est-à-dire de la diminution de la durée conjointe à une variation de l'intensité plus proche du plan focal [7]. Le couplage de premier ordre est quant à lui uniquement responsable de l'évolution de la durée, non conjointe à une variation de l'intensité plus proche du plan focal. On adimensionne cette expression par les transformations $\bar{y} = y/w_0$, $\bar{z} = z/w_0$, $\Delta\bar{\omega} = \Delta\omega/\Delta\Omega$, mettant en évidence l'influence des paramètres :

$$E(\bar{x} = 0, \bar{y}, z, \Delta\bar{\omega}) = A_0 \exp\left[\bar{z}^2 + \bar{y}^2 - \Delta\bar{\omega}^2\right] \times \exp\left[(2i\beta\Delta\Omega/\omega_0)\Delta\bar{\omega}^2\bar{z} + (2i\beta)\Delta\bar{\omega}\bar{z}\right]. \tag{2.5}$$

On peut ainsi montrer que le chirp spectral de deuxième ordre devient significatif seulement pour des impulsions présentant une valeur de β suffisamment élevée et/ou une bande spectrale $\Delta\Omega = 2/\tau_0$ suffisamment large, c'est-à-dire pour une durée suffisamment courte. Typiquement, $\tau_0 = 50$ fs et $\beta = 10$ donnent $(2i\beta\Delta\Omega/\omega_0)\Delta\bar{\omega}^2 = 0.34\Delta\bar{\omega}^2$, ce qui est comparable à l'enveloppe spectrale $\Delta\bar{\omega}^2$, l'influence de ce couplage est donc significative. Une impulsion de durée $\tau_0 = 150$ fs requerrait $\beta > 10$ pour avoir une influence non négligeable. Ce résultat est notable puisqu'il signifie qu'une durée suffisamment longue et une dérive spatiale

en fréquence modérée supprime l'effet du couplage de second ordre, responsable de la plus grande localisation de l'intensité proche du plan focal.

En négligeant le chirp spectral, et en réalisant la transformée de Fourier inverse (voir Annexe B) du champ (2.5), on obtient l'enveloppe du champ dans le plan focal du système :

$$E(0,z,t) \propto \exp\left(-\frac{z^2}{w_0^2} + 2Q_{zt}zt - \frac{t^2}{\tau_0^2}\right), \tag{2.6}$$

avec Q_{zt} un nombre réel représentant le PFT. Le choix d'une durée suffisamment longue, et d'une impulsion présentant un SPC modéré pour seul couplage au niveau de la lentille permet donc d'obtenir un PFT pour seul couplage dans le plan focal. Cette configuration semble donc appropriée pour étudier son influence, sans que l'analyse soit complexifiée par la présence d'effets physiques supplémentaires.

2.2.1.2 Description de l'impulsion laser d'après le formalisme matriciel

La sous-section précédente a mis en évidence une configuration laser particulière pour laquelle l'impulsion présenterait uniquement un PFT dans le plan focal du système. En toute rigueur, il est important de vérifier que cette configuration correspond bien à un cas physiquement réalisable. Pour cela, le formalisme matriciel de Kostenbauder (voir la sous-sous-section 1.4.4.2) peut-être utilisé pour modéliser le système optique présenté dans la figure 2.1, couramment considéré dans la SSTF pour la structuration de matériaux [4, 11, 12]. Cette méthode permet de calculer analytiquement la forme du champ en fonction des paramètres expérimentaux, et ainsi vérifier que l'on peut obtenir le champ donné par l'équation. (2.6). Ces calculs étant assez lourds, ils sont réalisés dans ce travail de thèse à l'aide d'un outil de calcul formel.

Comme précisé dans la sous-sous-section 1.4.4.2, chaque élément optique peut-être associé à une matrice de transfert. Les principaux éléments sont répertoriés dans la référence [5]. Considérant le système de la figure 2.1, on présente les matrices de transfert pour une propagation libre, pour une lentille et pour un réseau de diffraction. Une propagation libre et sans dispersion sur une distance x introduit uniquement une divergence du faisceau :

$$K_{L(x)} = \begin{bmatrix} 1 & x & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}. \tag{2.7}$$

Une lentille de longueur focale f introduit uniquement une variation de la courbure du faisceau :

$$K_f = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ -1/f & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}. \tag{2.8}$$

Un réseau de diffraction en réflexion est caractérisé par l'espacement d de ses rayures réfléchissantes, aussi appelé le "pas", ainsi que l'angle incident θ_i de l'impulsion par rapport à la normale au réseau. L'angle de diffraction θ_d est donné par la formule des réseaux :

$$\sin\theta_d = \sin\theta_i - \frac{\lambda}{d}. \tag{2.9}$$

La matrice de transfert du réseau est donnée par (les angles sont ici définis par rapport à la normale au réseau, et non pas par rapport au réseau comme dans la référence [5]) :

$$K_G = \begin{bmatrix} -\frac{\cos\theta_d}{\cos\theta_i} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -\frac{\cos\theta_i}{\cos\theta_d} & 0 & \frac{\lambda}{c}\frac{\sin\theta_d - \sin\theta_i}{\cos\theta_d} \\ -\frac{1}{c}\frac{\sin\theta_i - \sin\theta_d}{\cos\theta_i} & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}. \tag{2.10}$$

En termes de couplages spatio-temporels, le réseau introduit une dispersion angulaire et un PFT (l'interprétation des différents termes de ces matrices de transfert a été présentée dans la sous-sous-section 1.4.4.2). Il est intéressant d'introduire deux grandeurs adimensionnées afin de simplifier les expressions des matrices de transfert :

$$\alpha = \frac{\cos\theta_i}{\cos\theta_d}, \tag{2.11}$$

$$\zeta = \frac{\lambda}{d\cos\theta_d}. \tag{2.12}$$

L'angle de réflexion sur le premier réseau correspond à l'angle de réfraction sur le second réseau (au signe près), les réseaux étant parallèles. L'angle de réflexion sur le second réseau est égal à l'angle d'incidence sur le premier réseau ; toutes les fréquences sont réfléchies parallèles entre elles. Ces propriétés permettent d'écrire les matrices de transfert des deux réseaux G_1 et G_2 à partir des deux paramètres ζ et α :

$$K_{G1} = \begin{bmatrix} -1/\alpha & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -\alpha & 0 & -\lambda\zeta/c \\ -\zeta/\alpha c & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}, \tag{2.13}$$

$$K_{G2} = \begin{bmatrix} -\alpha & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1/\alpha & 0 & -\lambda\alpha\zeta/c \\ -\zeta/c & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}. \tag{2.14}$$

La matrice du compresseur $K_C = K_{G2}K_{L(L)}K_{G1}$ correspondant aux deux réseaux séparés

d'une distance L s'écrit alors :

$$K_C = \begin{bmatrix} 1 & -L\alpha^2 & 0 & -\lambda_0 L\alpha\zeta/c \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & L\alpha\zeta/c & 1 & -L\lambda_0\zeta^2/c^2 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}.$$

Les couplages introduits par ce système sont le SPC, la TVA et la GDD. Comme attendu, le système n'introduit pas de PFT. La GDD peut être compensée en introduisant une quantité égale et opposée de GDD à l'impulsion gaussienne en entrée du système [4], annulant le terme $-L\lambda_0\zeta^2/c^2$. En notant K'_C la matrice du compresseur (Eq. 2.2.1.2) sans GDD, le système complet présenté sur la figure 2.1 a pour matrice $K_{SSTF} = K_{L(f)}K_f K_{L(f)}K'_C$:

$$K_{SSTF} = \begin{bmatrix} 0 & f & 0 & 0 \\ -1/f & -L\alpha^2/f & 0 & \lambda_0 L\alpha\zeta/cf \\ 0 & L\alpha\zeta/c & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}. \tag{2.15}$$

On rappelle la forme du champ électrique dans le formalisme de Kostenbauder :

$$E(z,t) \propto \exp\left(\widetilde{Q}_{zz}z^2 + 2\widetilde{Q}_{zt}zt - \widetilde{Q}_{tt}t^2\right). \tag{2.16}$$

Suivant maintenant la méthode décrite dans la sous-sous-section 1.4.4.2 pour un champ gaussien incident sur le réseau :

$$E(z,t) \propto \exp\left(-\frac{z^2}{w_{in}^2} - \frac{t^2}{\tau_0^2}\right), \tag{2.17}$$

on détermine l'expression de chaque coefficient dans le plan focal du système :

$$\widetilde{Q}_{zz} = -\frac{\pi^2 w_0^2}{\lambda_0^2 f^2} - \frac{L^4\alpha^6\zeta^2}{c^2 f^4\left(\frac{L^2\alpha^4}{f^2} + \frac{\pi^2 w_{in}^4}{f^2\lambda^2}\right)\tau_0^2} - \frac{\pi^2 L^2 w_{in}^4\alpha^2\zeta^2}{c^2 f^4\left(\frac{L^2\alpha^4}{f^2} + \frac{\pi^2 w_{in}^4}{f^2\lambda^2}\right)\lambda^2\tau_0^2} + i\frac{\pi L\alpha^2}{\lambda_0 f^2}, \tag{2.18}$$

$$\widetilde{Q}_{zt} = \frac{L\alpha\zeta}{cf\tau_0^2}, \tag{2.19}$$

$$\widetilde{Q}_{tt} = \frac{1}{\tau_0^2}. \tag{2.20}$$

Le terme de couplage $\widetilde{Q}_{zt}$ étant réel, l'impulsion présente uniquement un PFT. La durée de l'impulsion est égale à sa valeur en entrée du système τ_0. Pour conclure, l'utilisation des matrices de Kostenbauder a permis de vérifier que le système considéré permet bien d'obtenir une impulsion présentant uniquement un PFT dans le plan focal. De plus, cette configuration correspond bien à une impulsion présentant uniquement un SPC au niveau de

la lentille. Pour l'étude du PFT, on considérera le champ électrique suivant dans le plan focal du système ($x = 0$) :

$$E(x = 0, z, t) \propto \exp\left(-\frac{z^2}{w_0^2} + 2Q_{zt}zt - \frac{t^2}{\tau_0^2}\right), \tag{2.21}$$

avec Q_{zt} un nombre réel.

2.2.2 Résolution de l'équation de propagation

Connaissant la forme du champ électrique dans le plan focal du système de focalisation spatio-temporelle (voir l'Eq. (2.6)), on peut à présent déterminer son évolution spatiale et temporelle en résolvant l'équation de propagation. Pour une propagation laser dans la direction x, la solution de l'équation paraxiale (1.87) s'écrit dans le domaine $(x, k_\perp, \Omega)$:

$$E(x, k_\perp, \Omega) = E(0, k_\perp, \Omega) \exp\left(-\frac{ik_\perp^2 x}{2k_0\widehat{T}}\right), \tag{2.22}$$

où $\widehat{T} = 1 + \Omega/\omega_0$. On déterminera l'expression de $E(0, k_\perp, \Omega)$ en réalisant la transformée de Fourier du champ au plan focal, donné par l'équation (2.6). Pour alléger les notations, et sans perte de généralité, on a ici réduit le champ au domaine (x, z, t). On considère une impulsion ayant subit une focalisation temporelle, et présentant pour seul couplage au plan focal ($x = 0$), un PFT dans la direction z

$$E(0, z, t) = \exp\left(-\frac{z^2}{w_0^2} + 2Q_{zt}zt - \frac{t^2}{\tau_0^2}\right), \tag{2.23}$$

où Q_{zt} est réel, et tel que $Q_{zt} < w_0\tau_0$ est nécessaire pour que l'énergie de l'impulsion soit finie. On peut adimensionner la condition de bord ainsi que la solution (2.22) avec $\bar{x} = x/x_R$ avec $x_R = \pi w_0^2/\lambda_0$ la longueur de Rayleigh, $\bar{z} = z/w_0$ et $\bar{t} = t/\tau_0$, on a ainsi :

$$E(0, \bar{z}, \bar{t}) = \exp\left(-\bar{z}^2 + 2\sqrt{1-\gamma}\bar{z}\bar{t} - \bar{t}^2\right), \tag{2.24}$$

où l'on a introduit le paramètre $\gamma = 1 - (w_0\tau_0 Q_{zt})^2$, correspondant à une représentation du PFT pour un waist et une durée donnée. Pour que l'énergie de l'impulsions soit finie, on a $0 < \gamma \leq 1$, où $\gamma = 1$ correspond au cas gaussien (soit $Q_{zt} = 0$). On exprime maintenant E dans le domaine $(\bar{k}_z, \bar{\Omega})$ en réalisant ses transformées de Fourier spatiale et temporelle (voir l'Annexe B) :

$$E(0, \bar{k}_z, \bar{\Omega}) = \frac{1}{2\sqrt{\gamma}} \exp\left[-\frac{\bar{k}_z^2}{4\gamma} - \frac{\sqrt{1-\gamma}}{2\gamma}\bar{\Omega}\bar{k}_z - \frac{\bar{\Omega}^2}{4\gamma}\right]. \tag{2.25}$$

La solution complète de l'équation paraxiale (Eq. 1.87) est alors

$$E(\bar{x}, \bar{k}_z, \bar{\Omega}) = \frac{1}{2\sqrt{\gamma}} \exp\left[-(1 + i\gamma\bar{x}/\widehat{T})\frac{\bar{k}_z^2}{4\gamma} - \frac{\sqrt{1-\gamma}}{2\gamma}\bar{\Omega}\bar{k}_z - \frac{\bar{\Omega}^2}{4\gamma}\right]. \tag{2.26}$$

On écrit cette solution dans l'espace $(\bar{x}, \bar{z}, \Omega)$

$$E(\bar{x}, \bar{z}, \bar{\Omega}) = \frac{1}{\sqrt{2(1+i\gamma\bar{x}/\widehat{T})}} \times \exp\left[-\left(\frac{\gamma}{1+i\gamma\bar{x}/\widehat{T}}\right)\bar{z}^2 - \frac{i\sqrt{1-\gamma}}{1+i\gamma\bar{x}/\widehat{T}}\bar{\Omega}\bar{z} - \left(\frac{1+ix/\widehat{T}}{1+i\gamma\bar{x}/\widehat{T}}\right)\frac{\bar{\Omega}^2}{4}\right]. \quad (2.27)$$

Cette expression est la solution générale de l'équation paraxiale. Elle met en évidence la dépendance de l'ensemble des caractéristiques de l'impulsion (waist, SPC, PFT, durée et TC) à la composante spectrale Ω. Pour une durée d'impulsion suffisamment longue, on peut appliquer l'approximation d'enveloppe lentement variable ($\Omega \ll \omega_0$), soit $\widehat{T} = 1$. On peut alors exprimer ce champ dans l'espace $(\bar{x}, \bar{z}, \bar{t})$:

$$E(\bar{x}, \bar{z}, \bar{t}) = \sqrt{f(\bar{x})}\exp\left[-f(\bar{x})\bar{z}^2 + 2f(\bar{x})\sqrt{1-\gamma}\bar{z}\bar{t} - f(\bar{x})(1+i\gamma\bar{x})\bar{t}^2\right], \quad (2.28)$$

avec $f(\bar{x}) = 1/(1+i\bar{x})$. Pour cette impulsion, l'évolution de la durée est uniquement due à la présence initiale du PFT. En effet, puisque les composantes spatiales et temporelles sont initialement couplées via le PFT, la focalisation spatiale entraîne de fait une évolution de la durée de l'enveloppe. On remarquera finalement que la partie réelle du terme de couplage (le PFT) est proportionnelle à $1/(1+x^2)$, et que la partie imaginaire (le SPC ou WFR) est proportionnelle à $x/(1+x^2)$. Le PFT décroissant plus rapidement que le SPC, on aura bien au niveau de la lentille une impulsion présentant un SPC significatif mais pas de PFT, ce qui est cohérent avec les résultats de la littérature.

Dans tout ce qui suit, on pourra parler indifféremment d'impulsion présentant un PFT ou d'impulsion présentant un SPC pour désigner le même cas. Il sera implicite que l'impulsion présente initialement uniquement un SPC, et dans le plan focal uniquement un PFT.

2.2.3 Évolution des caractéristiques de l'impulsion lors de la propagation

On présente dans cette sous-section les caractéristiques de l'impulsion décrite par l'équation (2.28). En tenant compte de la troisième dimension spatiale, l'intensité laser $I = \frac{1}{2}n_0\epsilon_0 c_0|E|^2$ prend la forme

$$I(\bar{x}, \bar{y}, \bar{z}, \bar{t}) = I_0\frac{1}{\bar{w}^2(\bar{x})} \times \exp\left[-\frac{2(\bar{y}^2+\bar{z}^2)}{\bar{w}^2(\bar{x})} + \frac{4\sqrt{1-\gamma}\bar{z}\bar{t}}{\bar{w}^2(\bar{x})} - \frac{2\bar{t}^2}{\bar{\tau}^2(\bar{x})}\right], \quad (2.29)$$

où $I_0 = \frac{1}{2}n_0\epsilon_0 c_0 E_0^2$, $\bar{w}(\bar{x}) = w(\bar{x})/w_0$ et $\bar{\tau}(\bar{x}) = \tau(\bar{x})/\tau_0$ décrivent respectivement les évolutions relatives du waist et de la durée de l'impulsion le long de l'axe de propagation. Notons que l'évolution longitudinale de l'intensité laser au centre du faisceau, donnée par l'équation (2.29) pour $y = 0$ et $z = 0$, ne dépend pas de γ. La configuration correspondant au champ de l'équation (2.6) dans le plan focal entraîne une évolution longitudinale de l'intensité au

centre du faisceau identique à celle d'une impulsion gaussienne. En effet, la localisation du pic d'intensité plus proche du plan focal est obtenue en considérant le chirp spectral de second ordre [7], qui est négligeable pour une d'impulsion de durée suffisamment longue et/ou une valeur assez faible du paramètre γ.

Deux raisons principales justifient de se placer dans le cas où le couplage de deuxième ordre est négligeable, bien qu'il ne permette pas la focalisation temporelle à proprement parler. Premièrement, il est a priori plus simple de discriminer l'influence du PFT en l'absence d'un effet de focalisation temporelle. De plus, la focalisation temporelle est l'effet généralement étudié, contrairement au PFT qui est pourtant inhérent à la méthode. Deuxièmement, la présence de couplages d'ordres supérieurs typiquement obtenus pour des courtes durée entraîne la non-validité de l'hypothèse de la monochromaticité de l'impulsion, et ne pourrait pas être traitée en toute rigueur par le modèle d'ionisation de Keldysh ou les approches simplifiées qui en découlent. Les courtes durées impliquent également la dispersion de l'impulsion, complexifiant encore l'analyse.

2.2.3.1 Évolutions du waist et de la durée

Le waist et la durée sont définis comme la largeur à $1/e$ du profil d'intensité, respectivement dans les domaines spatial et temporel. Ils s'écrivent :

$$w(\bar{x}) = w_0\sqrt{1+\bar{x}^2}, \tag{2.30}$$

$$\tau(\bar{x}) = \tau_0\sqrt{\frac{1+\bar{x}^2}{1+\gamma\bar{x}^2}}. \tag{2.31}$$

L'évolution longitudinale du waist suit la même évolution que pour une impulsion gaussienne conventionnelle et ne dépend pas du couplage. Le terme de couplage spatio-temporel γ dans l'équation (2.31) induit une évolution de la durée de l'impulsion durant la propagation laser. Cette évolution est cependant limitée puisqu'une grande valeur du couplage Q_{zt} conduit à $\gamma \to 0$, et donc une durée d'impulsion indépendante de γ. La durée suit alors la même évolution relative que le waist.

La durée relative de l'impulsion $\tau(\bar{x})/\tau_0$ le long de l'axe $\bar{x} = x/x_R$ est présentée dans la figure 2.2 pour trois valeurs du terme de couplage Q_{zt}. Les largeurs à mi-hauteur du waist et de la durée du faisceau sont respectivement $\sqrt{2\ln 2}w_0$=1 μm et $\sqrt{2\ln 2}\tau_0$ =150 fs. Les valeurs considérées pour le couplage sont $Q_{zt} = 0$ (correspondant à une impulsion gaussienne sans PFT), $Q_{zt} = 7.15 \times 10^{-3}$ fs$^{-1}\mu$m^{-1}, et $Q_{zt} = 8.31 \times 10^{-3}$ fs$^{-1}\mu$m^{-1}. Le plan focal est situé en $\bar{x} = 0$. La durée de l'impulsion augmente avec la distance au plan focal. En $\bar{x} = -3.5$, les étirements temporels sont respectivement $\alpha = 1$ pour $Q_{zt} = 0$, $\alpha = 1.5$ pour $Q_{zt} = 7.15\times10^{-3}$ fs$^{-1}\mu$m^{-1}, et $\alpha = 2$ pour $Q_{zt} = 8.31 \times 10^{-3}$ fs$^{-1}\mu$m^{-1}. Pour un waist et une durée fixés, un plus grand PFT, représenté par une plus grande valeur de Q_{zt}, entraîne comme attendu une plus forte évolution de la durée. Notons que Durfee *et al.* [7] ont également dérivé une

expression pour l'évolution de la durée. En reprenant nos notations elle prend la forme

$$\tau(\bar{x})_{Durfee} = \tau_0 \sqrt{\frac{1+\bar{x}^2/\gamma}{1+\bar{x}^2}}. \tag{2.32}$$

Comme expliqué dans la sous-sous-section 2.2.1.1, cette expression contient implicitement une hypothèse dont notre modèle s'est affranchi, à savoir que l'ouverture numérique du faisceau dépend du SPC initial en entrée (voir l'Eq. (2.4)). En d'autres termes, les grandes valeurs du couplage γ correspondent à un large waist du faisceau à l'entrée de la lentille, et ne respectent plus nécessairement l'hypothèse paraxiale. Cette discussion sera illustrée dans les paragraphes suivant.

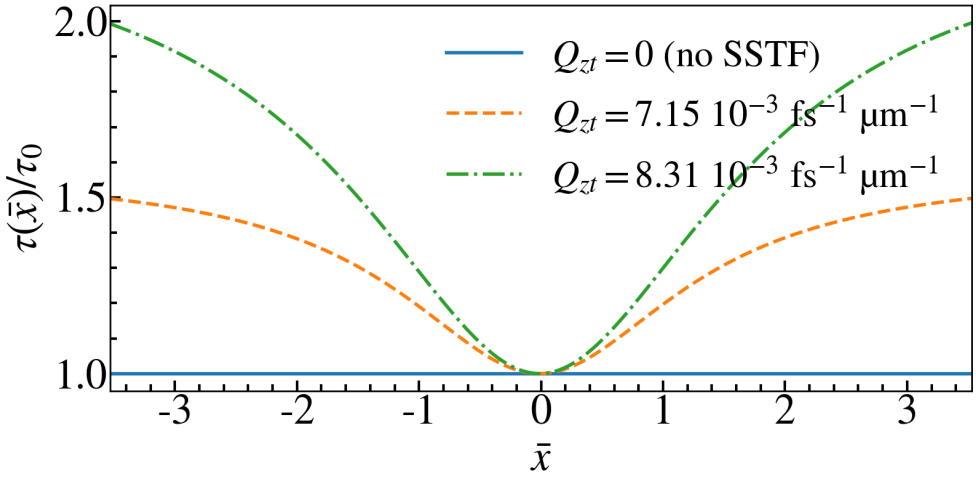

FIGURE 2.2 – Évolution longitudinale de la durée de l'impulsion normalisée, le long de l'axe de propagation $\bar{x} = x/x_R$. Différentes valeurs du terme de couplage Q_{zt} sont considérées.

A partir des expressions (2.31) et (2.32), on peut identifier l'étirement temporel α_∞ défini comme le facteur d'étirement de la durée à une distance asymptotique du plan focal, soit $\alpha_\infty = \tau(x)|_{x \gg x_R}/\tau_0$ ou encore

$$\alpha_\infty = \frac{1}{\sqrt{\gamma}}. \tag{2.33}$$

Le modèle ici développé et le modèle de Durfee *et al.* prédisent donc le même étirement temporel loin du plan focal. De plus, les deux modèles prédisent la même évolution de la durée pour des faibles couplages tels que $\alpha_\infty < 2$. Dans ce qui suit, on utilisera le paramètre α_∞ plutôt que le paramètre γ pour représenter le PFT (pour un waist et une durée fixés).

La figure 2.3 présente l'évolution longitudinale de la durée de l'impulsion mesurée expérimentalement par Zhu *et al.* [8], ainsi que celles obtenues en utilisant l'équation (2.32) et l'expression obtenue par Durfee *et al.* [7]. L'étirement temporel est $\alpha_\infty = 25$, pour une impulsion de 800 nm, 84 fs et de 100 µm au niveau de la lentille de focalisation, de focale $f = 600$ µm. Dans ce cas, l'ouverture numérique associée est NA$= w_{in}/f = 0.17$, et l'approximation paraxiale reste valide. Dans le plan focal, le waist et la longueur de Rayleigh sont respec-

tivement $\sqrt{2\ln 2}w_0 = 1.5$ µm et $x_R = 9.1$ μm. L'évolution de la durée d'impulsion fournie par l'équation (2.31) est en accord avec les mesures expérimentales. L'expression de Durfee *et al.* n'est pas valide dans le cas présent puisque la forte valeur du couplage correspond dans leur modèle à une grande ouverture numérique (forte focalisation), et donc la violation de l'hypothèse paraxiale. Ce résultat suggère cependant que la forte focalisation du faisceau doit permettre une forte variation de la durée très proche du plan focal.

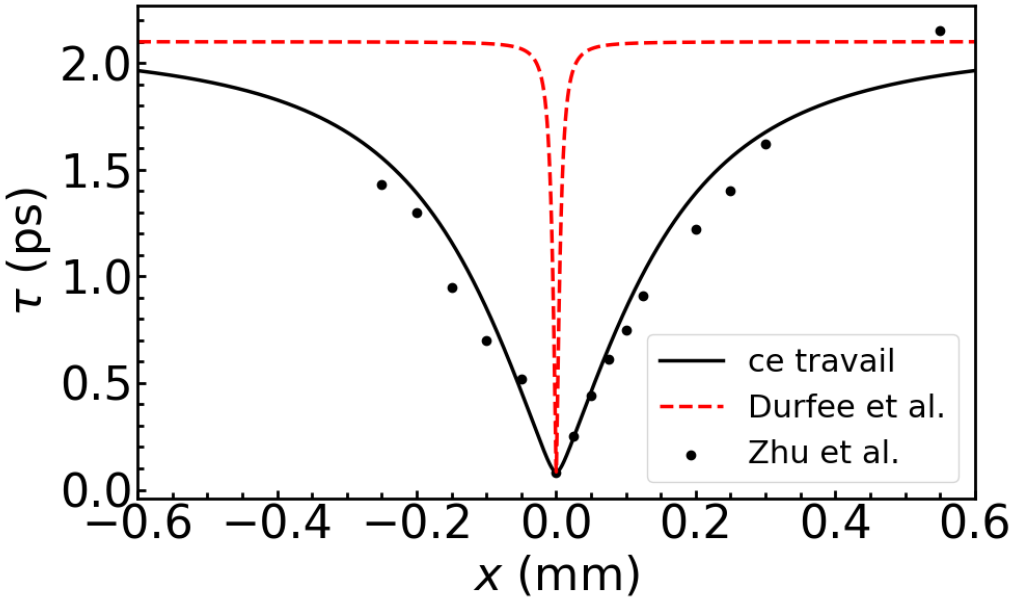

FIGURE 2.3 – Évolution longitudinale de la durée de l'impulsion mesurée par Zhu *et al.* [8], et comparée à 2.31 et à celle de Durfee *et al.*

2.2.3.2 Intensité, fluence et longueur d'onde

On considère à présent une impulsion de waist $\sqrt{2\ln 2}w_0 = 1$ μm et de durée $\sqrt{2\ln 2}\tau_0 = 150$ fs (mesurés à mi-hauteur). On rappelle que le plan transverse est le plan (y, z), avec un couplage dans la direction z, et que la direction de propagation est x. La distribution spatio-temporelle de l'intensité dans le plan focal est présentée dans la figure 2.4, pour $z = 0$ (figure gauche) et $y = 0$ (figure droite). Dans le domaine (y, t), le faisceau présente une distribution gaussienne dans les composantes temporelle et spatiale. Dans le domaine (z, t), l'impulsion est inclinée, indiquant la présence d'un PFT. L'angle de ce PFT est définie comme l'angle de la distribution en intensité [10] et est donné par $\theta_{PFT} = (1 - \gamma)\tau_0/w_0$. Le waist du faisceau dans la direction y au pic d'intensité ($t = 0$) est identique au waist dans la direction z à $t = 0$. Cependant, le PFT entraîne un élargissement du faisceau dans la direction z pour toute durée $t \neq 0$ (voir l'Eq. (2.29)). Du point de vue temporel, la partie de l'impulsion telle que $z < 0$ atteindra le plan focal avant la partie située en $z > 0$. Du fait de cette asymétrie, des dynamiques électroniques différentes sont attendues dans les plans (x, y) et (x, z), contrairement au cas d'une impulsion gaussienne.

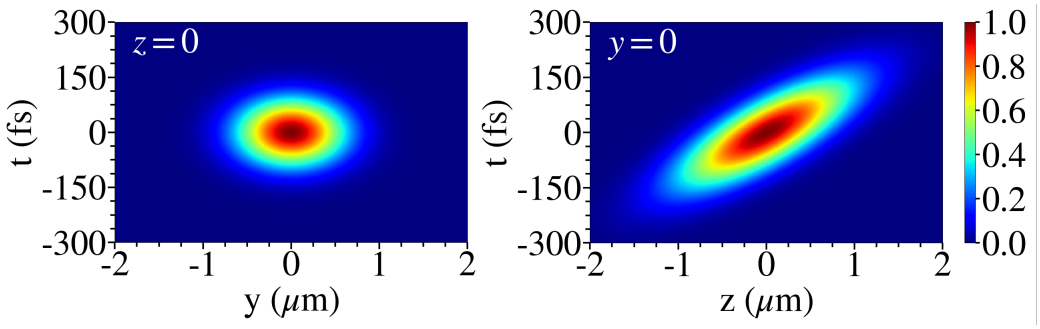

FIGURE 2.4 – Distribution spatiotemporelle de l'intensité laser dans le plan focal, dans les domaines (y,t) en $z=0$, et (z,t) en $y=0$. Le PFT est dans la direction z.

La figure 2.5 présente le profil spatio-temporel de l'intensité dans les domaines (y,t) et (z,t) pour différentes valeurs du terme de couplage : (a) cas gaussien, (b) $Q_{zt} = 7.15\times10^{-3}$ fs$^{-1}\mu$m^{-1} ou $\alpha_\infty = 1.58$, (c) $Q_{zt} = 9.05\times10^{-3}$ fs$^{-1}\mu$m^{-1} ou $\alpha_\infty = 4.71$ et (d) $Q_{zt} = 9.20\times10^{-3}$ fs$^{-1}\mu$m^{-1} ou $\alpha_\infty = 8.45$. On rappelle que l'augmentation de la valeur du couplage Q_{zt} correspond à une augmentation de l'angle du PFT. Cela se traduit également par une augmentation importante de l'extension spatiale et temporelle de l'impulsion. Pour le cas présenté dans la figure 2.5.(d), l'angle du PFT est $\theta_{PFT} = 174$ fs/μm. Pour comparaison, Zhukov *et al.* [4] utilisent dans leur étude numérique une impulsion de durée $\sqrt{2\ln 2}\tau_0 = 50$ fs, de même longueur d'onde et waist que présentés ici, et considèrent un angle maximum $\theta_{PFT} = 75$ fs/μm. Cet angle est trois fois inférieur à l'angle maximum ici considéré, mais pour une durée également trois fois inférieure. Dans leur travaux, Zhu *et al.* [8] obtiennent expérimentalement un angle de 56 fs/μm, pour une durée de 84 fs et une configuration similaire, correspondant à un étirement temporel $\alpha_\infty = 25$. Il est donc clair qu'un grand angle de PFT ne correspond pas nécessairement à une grande valeur de α_∞. On en conclut que l'angle du PFT n'est pas le critère principal concernant la faisabilité d'une configuration donnée, puisqu'il dépend avant tout du rapport entre le waist et la durée. On veillera en revanche à utiliser des valeurs raisonnables pour l'étirement temporel α_∞, typiquement inférieures à celles rapportées par Zhu *et al.*

La distribution spatiale de la fluence laser F est obtenue par intégration temporelle de l'équation (2.29)

$$F(\bar{x},\bar{y},\bar{z}) = \sqrt{\frac{\pi}{2\gamma}}\frac{I_0\tau_0}{\bar{w}(\bar{x})\bar{w}_{eff}(\bar{x})}\times\exp\left[-\frac{2\bar{y}^2}{\bar{w}^2(\bar{x})}-\frac{2\bar{z}^2}{\bar{w}^2_{eff}(\bar{x})}\right], \tag{2.34}$$

où $w_{eff}(\bar{x})$ représente un waist effectif, defini comme la largeur à mi-hauteur du profil de la fluence dans la direction z

$$w_{eff}(\bar{x}) = w_0\sqrt{\frac{1+\gamma\bar{x}^2}{\gamma}}. \tag{2.35}$$

Il est clair d'après l'équation (2.34) que la fluence présente une forme elliptique dans la plan transverse (y,z) du fait du terme de couplage. On peut ainsi contrôler la dimension

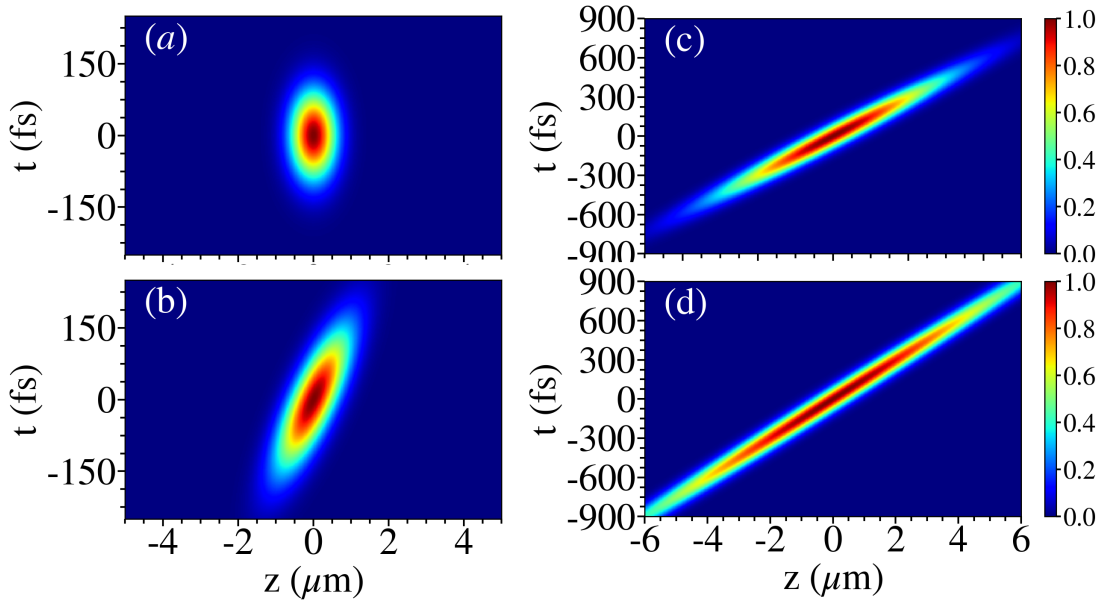

FIGURE 2.5 – Distribution spatio-temporelle de l'intensité laser normalisée pour divers valeurs du PFT. (a) cas gaussien, (b) $Q_{zt} = 7.15 \times 10^{-3}$ fs$^{-1}\mu$m^{-1} ou $\alpha_\infty = 1.58$, (c) $Q_{zt} = 9.05 \times 10^{-3}$ fs$^{-1}\mu$m^{-1} ou $\alpha_\infty = 4.71$ et (b) $Q_{zt} = 9.20 \times 10^{-3}$ fs$^{-1}\mu$m^{-1} ou $\alpha_\infty = 8.45$.

transverse du dépôt d'énergie à partir du PFT, et sans modifier l'ouverture numérique du faisceau. La distribution de la fluence dans le plan (x, z) est présentée dans la figure 2.6, avec les mêmes paramètres que les cas (a), (b), (c) et (d) de la figure 2.5. Les impulsions non gaussiennes présentent une extension transverse plus large qui augmente avec Q_{zt}. Notons enfin que l'extension dans la direction longitudinale x est également augmentée par le PFT. La largeur à mi-hauteur du profil longitudinal de fluence est d'environ 8 μm pour l'impulsion gaussienne (Fig. 2.6.(a)), et environ 12 μm pour $\alpha_\infty = 8.45$ (Fig. 2.6.(d)). Cela provient de la plus forte augmentation de la durée de l'impulsion avec la distance au plan focal dans le cas des impulsions présentant un PFT. Cette extension dans la direction longitudinale reste cependant ténue par rapport à l'extension dans la dimension transverse.

On conclut cette sous-section dans l'optique d'étudier l'interaction entre une impulsion avec dérive spatiale en fréquence et un matériau. L'impulsion laser ici étudiée présente l'ensemble des couplages de premier ordre au cours de sa propagation (voir Eq. 2.28), excepté au niveau de la lentille de focalisation où seul un SPC est présent, et dans le plan focal où seul un PFT est présent. En particulier, l'impulsion laser présente une dérive temporelle des fréquences. Les modèles de photoionisation considérés dans la sous-section 1.2.1 supposant une impulsion monochromatique, on doit vérifier que le TC n'introduit pas de trop grandes variations de la longueur d'onde invalidant cette hypothèse. On propose pour cela une approche simple pour déterminer la distribution spatio-temporelle de longueur d'onde au centre du faisceau ($y = z = 0$). Soit un champ électrique de la forme :

$$E = E_0 \exp\left(-\frac{z^2}{w_0^2} - \frac{t^2}{\tau_0^2}\right) \exp(-i\omega(t)t). \tag{2.36}$$

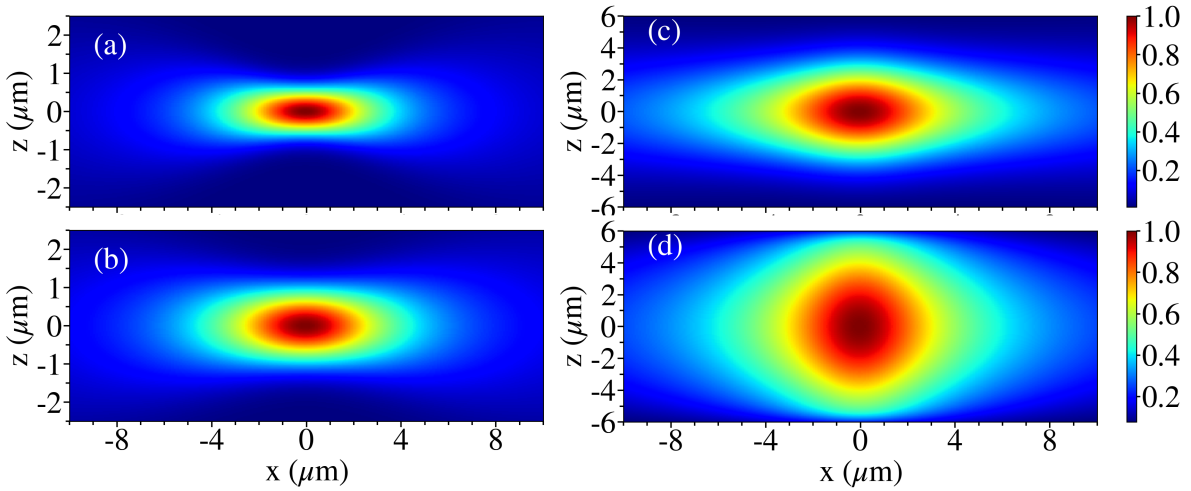

FIGURE 2.6 – Distribution spatiale de la fluence laser normalisée. (a) cas gaussien, (b) $Q_{zt} = 7.15 \times 10^{-3}$ fs$^{-1}\mu$m^{-1} ou $\alpha_\infty = 1.58$, (c) $Q_{zt} = 9.05 \times 10^{-3}$ fs$^{-1}\mu$m^{-1} ou $\alpha_\infty = 4.71$ et (b) $Q_{zt} = 9.20 \times 10^{-3}$ fs$^{-1}\mu$m^{-1} ou $\alpha_\infty = 8.45$.

On définit la longueur d'onde dépendante du temps par $\lambda(t) = \lambda_0 - \eta_t t$, où $\eta_t = \partial_t \lambda$ est le taux de dérive temporelle de la longueur d'onde. La pulsation laser $\omega = 2\pi c/\lambda$ est alors :

$$\omega(t) = \omega_0 \frac{1}{1 - \eta_t t/\lambda_0} \simeq \omega_0 \left(1 + \frac{\eta_t t}{\lambda_0}\right), \tag{2.37}$$

où l'on a réalisé un développement limité au premier ordre puisque l'on considère uniquement les couplages spatio-temporels au premier ordre. Le TC apparaît alors dans l'équation (2.36) :

$$E = E_0 \exp\left(-\frac{z^2}{w_0^2} - \left(\frac{1}{\tau_0^2} + i\omega_0\eta_t/\lambda_0\right) t^2\right) \exp(-i\omega_0 t). \tag{2.38}$$

On identifie le chirp temporel $\beta = -\omega_0\eta_t/\lambda_0$ à partir de sa définition (sous-sous-section 1.4.4.2). On en déduit la longueur d'onde $\lambda(t) = \lambda_0(1 + \beta t/\omega_0)$. Par ailleurs, à partir de la définition du chirp temporel, et de la solution de l'équation de propagation (Eq. (2.28)), on identifie $\beta(\bar{x}) = \gamma\bar{x}/\tau_0^2\sqrt{1 + i\bar{x}}$. La distribution de longueur d'onde au centre du faisceau ($y = z = 0$) est donc

$$\lambda(\bar{x}, \bar{t}) = \lambda_0 \left(1 + \frac{\gamma\bar{x}\bar{t}}{\omega_0\tau_0\sqrt{1 + i\bar{x}}}\right). \tag{2.39}$$

L'évolution temporelle de la longueur d'onde en fonction de la coordonnée longitudinale x est présentée sur la figure 2.7 pour $\alpha_\infty = 1.58$ (a) et $\alpha_\infty = 8.45$ (b). La longueur d'onde varie avec la distance à l'axe de propagation, et également avec la durée. La longueur d'onde est égale à la longueur d'onde centrale $\lambda_0 = 800$ nm sur l'axe optique, et également à l'instant $t = 0$. L'augmentation du terme de couplage entraîne une plus forte variation de la longueur d'onde, qui atteint au maximum ± 10 μm sur la plage présentée. Pour $\lambda_0 = 0.790$ μm, les photons ont une énergie $\hbar\omega = 1.52$ eV, ce qui ne modifie pas l'ordre multiphotonique pour d'ionisation pour la silice (6 photons sont nécessaires).

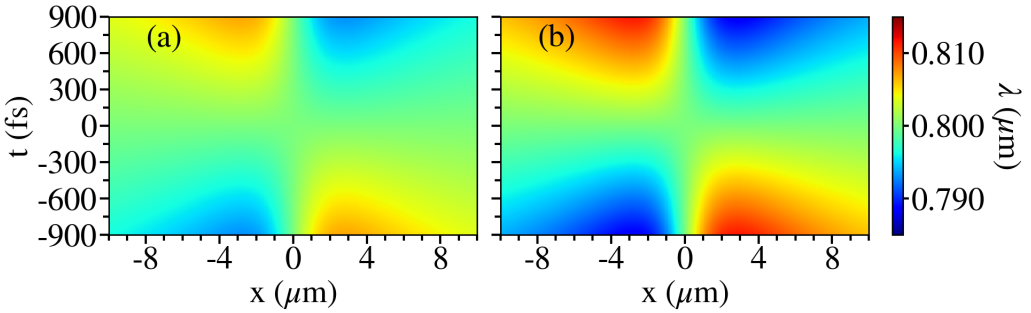

FIGURE 2.7 – Profil longitudinal et temporel de la longueur d'onde laser au centre du faisceau ($y = z = 0$), (a) pour $Q_{zt} = 7.15\ 10^{-3}\ fs^{-1}\mu m^{-1}$ ou $\alpha_\infty = 1.58$, (b) pour $Q_{zt} = 9.20\ 10^{-3}\ fs^{-1}\mu m^{-1}$ ou $\alpha_\infty = 8.45$.

2.3 Simulation de l'interaction d'une impulsion focalisée spatialement et temporellement dans la silice

Cette section présente les simulations de l'interaction d'une impulsion présentant initialement une dérive spatiale en fréquence. On commencera par décrire brièvement le fonctionnement du code ARCTIC (les équations constitutives étant présentées dans le Chapitre 1) ainsi que les paramètres considérés pour les simulations. On présentera ensuite les singularités des dépôts d'énergie et des dynamiques électroniques correspondantes au sein d'un volume de silice pour les impulsions considérées. On montrera finalement la possibilité de contrôler la géométrie des structures à partir du PFT (ou de manière équivalente, du SPC initial).

2.3.1 Code ARCTIC et paramètres des simulations

Le code ARCTIC

La propagation d'une unique impulsion laser femtosconde dans la silice fondue est réalisée à l'aide du code de propagation ARCTIC résolvant les équations de Maxwell en trois dimensions [13], et couplées à un modèle à deux température incluant la dynamique électronique. Les équations sont discrétisées dans les trois dimensions de l'espace suivant le schéma de Yee [14] et les limites du domaine utilisent une "couche absorbante parfaitement adaptée" (Perfectly Matched Layer ou PML) [15].

Dans le code ARCTIC, l'impulsion est d'abord définie dans le plan focal ($x = 0$) par l'équation (2.6), avant d'être rétro-propagée vers le bord du domaine ($x = x_b$) dans l'espace de Fourier spatial et temporel d'après la méthode développée par Thiele *et al.* [16]. Cette méthode est générale et permet de propager une condition de bord quelconque définie dans le plan focal.

L'évolution de la densité d'électrons en bande de conduction tient compte de la photoionisation calculée à partir du modèle de Keldysh (Eq. (1.1)), de l'ionisation par impact décrite par le modèle de Peñano (Eq. (1.19)), et de la recombinaison décrite par une loi exponentielle.

L'énergie transférée au réseau est calculée à partir du modèle à deux température (Eq. 1.30). En fin de simulation (lorsque la majorité des électrons a recombiné, après 1 à 2 picosecondes selon les cas) l'énergie restante est transférée au réseau. Cela garantit que le transfert d'énergie des électrons vers le réseau soit achevé et l'équilibre atteint. Notons que pour une impulsion femtoseconde, les processus de relaxation hydrodynamique et de conduction thermiques des électrons et du réseau sont négligés, leur ordre de grandeur dans les diélectriques étant respectivement la picoseconde et la microseconde [17].

Paramètres pour les simulations

En vue d'obtenir un dépôt d'énergie localisé près du plan focal, l'intensité et l'ouverture numérique des impulsions seront fixées à des valeurs modérées. Notons que la forte focalisation pourrait être utilisée pour favoriser la précision, mais introduirait de nouveaux effets dans l'interaction, ce qui compliquerait l'analyse de l'influence du PFT. On considérera des conditions paraxiales avec $NA = 0.3$ et des intensités d'une dizaine de TW/cm^2 (proche du seuil d'endommagement de la silice [17]) à une centaine de TW/cm^2. Dans de telles conditions, seules de faibles modifications du matériau sont attendues pour l'interaction avec une impulsion [4], et des modifications significatives nécessiteraient l'utilisation de multiples impulsions avec un taux de répétition élevé [18]. On choisira une durée de 150 fs assurant une relative monochromaticité du faisceau pour une impulsion chirpée. Une durée plus courte pouvant rendre invalide l'utilisation de ce modèle, et un modèle d'ionisation dépendant du temps devrait être implémenté dans le code ARCTIC [19].

Les paramètres lasers utilisés dans cette étude sont présentés dans le tableau 2.1. Le waist et la durée de l'impulsion sont donnés dans le plan focal. La largeur à mi-hauteur du waist est $\sqrt{2\ln 2}w_0 = 1$ μm et correspond à une ouverture numérique $NA = \lambda_0/w_0\pi \simeq 0.3$. La fréquence de collision ν_e et la durée de relaxation électron-réseau τ_{el} sont choisies constantes, connaissant leur ordre de grandeur [20]. Pour simplifier les modèles, on attribue souvent une valeur effective à la fréquence de collision, [21, 4, 13], notamment dans des conditions d'intensité et de focalisation modérées. Pour des intensités de quelques dizaines de TW/cm^2, l'évolution de la fréquence de collision reste faible. De plus, compte tenu de l'ouverture numérique et de l'intensité laser modérées du faisceau, l'énergie électronique attendue est de quelques eV et le chauffage du réseau bien en dessous du seuil de modification. De faibles variations de ν_e et γ_{el} ont ainsi peu d'influence sur les résultats concernant la géométrie du dépôt d'énergie dans le matériau, qui reste principalement corrélée à la densité électronique. Notons que l'énergie maximale considérée pour les impulsions est ici de 250 nJ, correspondant à une puissance de 1.8 MW, inférieure à la puissance critique pour l'autofocalisation dans la silice (2.8 MW) [22]. L'effet Kerr est donc négligé dans les simulations ($\chi^{(3)} = 0$) afin de diminuer le coût numérique des calculs.

Le gradient en fréquence est dans la direction z et la durée des simulations est ajustée selon sa valeur et l'étirement temporel de l'impulsion qui en résulte. Pour chaque simulation le pic d'intensité atteint le bord x_b du domaine après une durée $2\sqrt{2\ln 2}\tau(x_b)$, c'est-à-dire deux fois

la durée de l'impulsion (à mi-hauteur) au point $x = x_b$. La simulation est stoppée après que l'impulsion laser ait traversé tout le domaine. Pour l'impulsion gaussienne, le pic d'intensité atteint le plan focal après 300 fs et la simulation prend fin à 1 ps. Pour l'impulsion avec la plus forte dérive en fréquence, ces durées sont de 900 fs et 2 ps, respectivement.

Pour chaque simulation, le domaine spatial a une longueur de 20 μm le long de l'axe de propagation x, et de 16 μm dans les deux directions transverses y et z. La résolution spatiale de 5 nm dans toutes les directions et la résolution temporelle de 0.05 fs assurent la convergence numérique des calculs. L'impulsion laser commence sa propagation à partir du point $x_b = -14.5$ μm, $x = 0$ correspondant au plan focal dans le matériau.

TABLE 2.1 – **Paramètres laser et matériaux utilisés pour les simulations. [20, 23]**

Paramètre	Symbole	Valeur
Longueur d'onde	λ_0	800 nm
Waist (à mi-hauteur)	$\sqrt{2\ln 2}w_0$	1 μm
Durée (à mi-hauteur)	$\sqrt{2\ln 2}\tau_0$	150 fs
Densité de la silice	ρ_0	2.2 g/cm^3
Indice de réfraction	n_0	1.45
Bande interdite	U_g	9 eV
Capacité calorifique du réseau	C_l	1.6 J/cm^3/K
Susceptibilité linéaire	$\chi^{(1)}$	1.11
Fréquence de collision effective	ν_e	3 fs^{-1}
Durée de relaxation électron-réseau	τ_{el}	1 ps

2.3.2 Dépôt d'énergie et dynamique électronique

Dans cette sous-section, on s'intéresse à l'influence du PFT sur le processus d'absorption de l'énergie laser selon l'énergie de l'impulsion. Trois énergies sont considérées, $W_1 = 125$ nJ, $W_2 = 180$ nJ and $W_3 = 250$ nJ, et l'influence du PFT est étudiée dans chaque cas en faisant varier α_∞. Selon la valeur du PFT, l'intensité laser maximale dans le plan focal varie pour une énergie W_p donnée. La relation entre l'intensité pic I_p au plan focal, l'énergie W_p et l'étirement temporel asymptotique α_∞ est obtenue par intégration de l'équation (2.29) :

$$I_p = \left(\frac{2}{\pi}\right)^{3/2} \frac{W_p}{w_0^2 \tau_0 \alpha_\infty}. \tag{2.40}$$

Pour une même énergie W_p, l'intensité pic diminue avec α_∞ du fait de l'extension spatiale supplémentaire introduite par le PFT (voir la Fig. 2.4). Une impulsion gaussienne d'énergie W_p aura ainsi une intensité I_p plus élevée qu'une impulsion avec dérive spatiale en fréquence. Les intensités laser correspondant aux différents cas étudiés ici sont présentés dans le tableau 2.2. La valeur de l'étirement temporel α_b au bord du domaine est également présentée.

La distribution finale de l'énergie du réseau dans le domaine (x, z) est présentée sur la figure 2.8 pour $W_2 = 180$ nJ, correspondant aux intensités I_2 du Tableau 2.2. On observe une

TABLE 2.2 – **Valeurs des couplages spatio-temporels Q_{zt}, étirement temporel asymptotique α_∞, étirement temporel à l'entrée du domaine α_b ($x_b = -14.5$ μm), et intensités laser dans le plan focal I_1, I_2 et I_3 correspondants respectivement aux énergies 125, 180 and 250 nJ utilisées dans les simulations.**

Q_{zt} (fs$^{-1}\mu$ m^{-1})	α_∞	α_b	I_1 (TW/cm^2)	I_2 (TW/cm^2)	I_3 (TW/cm^2)
0	1	1	68.5	100	137
7.15 10^{-3}	1.58	1.5	43.5	63.5	87
8.31 10^{-3}	2.26	2	30	44	60
8.80 10^{-3}	3.21	2.5	21	31	42
9.05 10^{-3}	4.71	3	14	20	28
9.20 10^{-3}	8.45	3.5	10	14	20

diminution du maximum d'énergie absorbée avec l'augmentation de α_∞, en lien avec la diminution de l'intensité crête dans le plan focal. Pour l'impulsion gaussienne ($\alpha_\infty = 1$), la distribution de l'énergie absorbée présente la forme de "larme" attendue pour une ouverture numérique modérée [18, 24].

L'augmentation de α_∞ modifie la forme du volume d'absorption, le compressant dans la direction longitudinale et l'étirant dans la direction transverse. L'augmentation du PFT conduit donc à un net élargissement du dépôt d'énergie dans la direction du couplage spatio-temporel. Pour les valeurs intermédiaire du PFT ($\alpha_\infty = 1.58$ à 3.21), il résulte également une asymétrie, une plus grande inhomogénéité du dépôt d'énergie dans le plan (x, z). Cette asymétrie tend à s'effacer pour les plus hautes valeur de α_∞, jusqu'à disparaître entièrement pour $\alpha_\infty = 8.45$. L'énergie déposée diminue avec α_∞, conjointement à la diminution de l'intensité crête.

Afin de mieux comprendre la forme des dépôts d'énergie présentés sur la figure 2.8, la figure 2.9 présente la distribution spatiale de la densité électronique dans le domaine (x, z) en $y = 0$ à différents instants. Les cas considérés sont $\alpha_\infty = 1.58$ (partie gauche) et $\alpha_\infty = 4.71$ (partie droite). La densité électronique est normalisée par la densité critique $N_c = 1.7 \times 10^{21}$ cm^{-3}. Dans les deux cas, l'instant t_0 correspondant à l'instant où le pic d'intensité atteint le bord du domaine $x = x_b$. Les instants suivant sont définis à intervalles réguliers en tenant compte de α_∞, soit $t_1 = t_0 + \Delta t$ et $t_2 = t_1 + \Delta t$ où $\Delta t = \alpha_\infty \tau_0/4$ ($\Delta t = 50$ fs pour $\alpha_\infty = 1.58$ et $\Delta t = 150$ fs pour $\alpha_\infty = 4.71$). Avant $t = t_0$, la densité électronique apparaît au niveau du plan focal. Après $t = t_2$, les électrons en bande de conduction recombinent progressivement. Pour les deux configurations, l'ionisation débute dans la région $z < 0$ et termine dans la région $z > 0$, en raison du signe du PFT (voir Fig. 2.4). Pour plus de clarté, la partie de l'impulsion arrivant en $z < 0$ sera dénommée partie inférieure (ou tête de l'impulsion), et la partie arrivant en $z > 0$ sera dénommée partie supérieure (ou queue de l'impulsion).

Pour $\alpha_\infty = 1.58$ la densité se développe plus proche de l'axe optique en raison du plus faible angle du PFT. La densité critique est déjà atteinte à l'instant t_0, dans la zone $x = -2$ μm à $x = 2$ μm. La région ionisée, ou front d'ionisation, se déplace ensuite vers la source

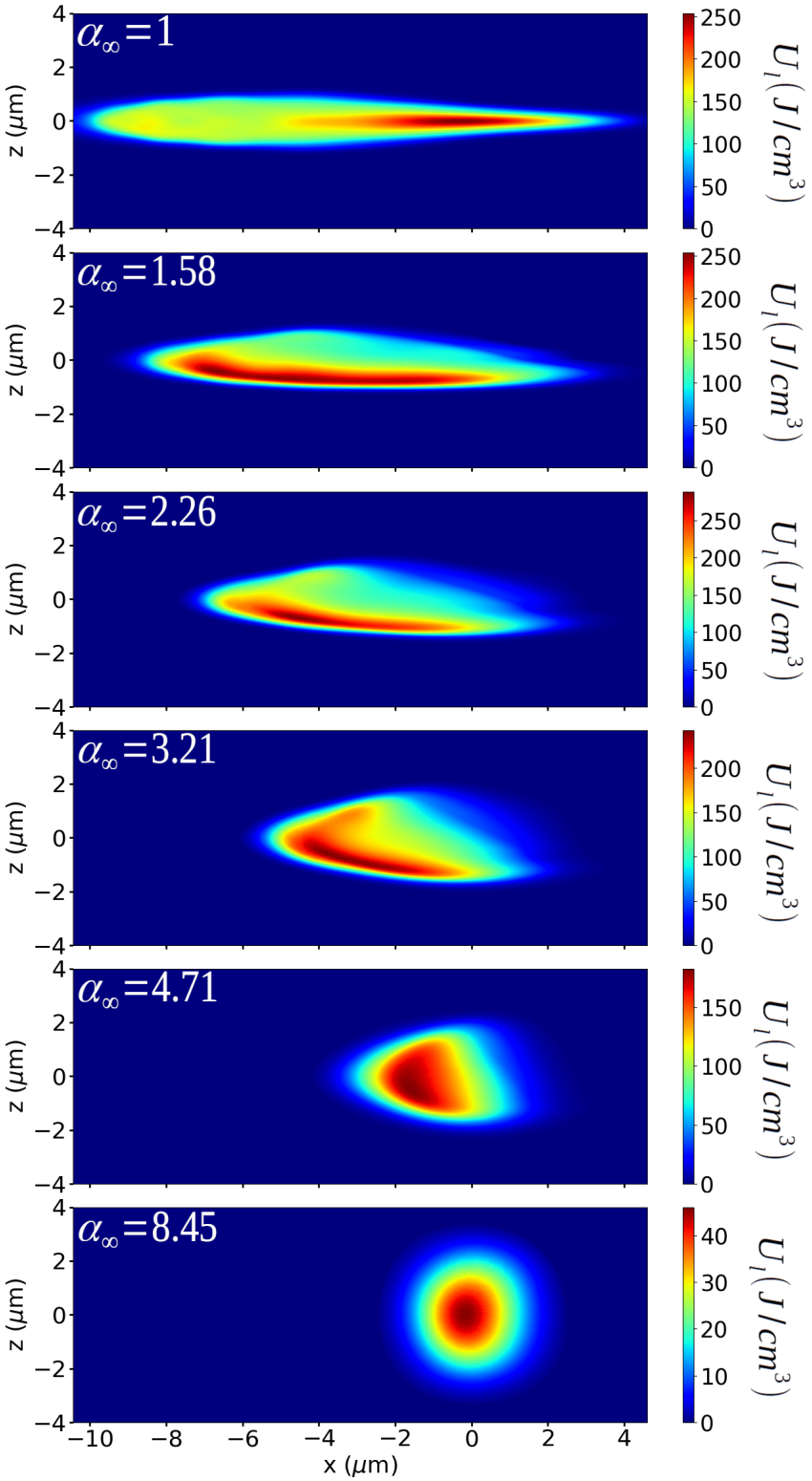

FIGURE 2.8 – Distributions spatiales de la densité d'énergie absorbée dans le plan (x, z) pour $W_p = 180$ nJ et pour différentes valeurs du couplage α_∞. Le laser se propage de la gauche vers la droite.

laser. C'est également le comportement attendu dans le cas d'une interaction avec une impulsion gaussienne [25]. Du fait de cette forte densité électronique et de sa proximité avec l'axe optique, la partie inférieure du champ laser subit une absorption et une défocalisation importante, résultant en une diminution de l'intensité crête. La partie supérieure de l'impulsion présente donc une moindre intensité, entraînant une plus faible excitation du matériau dans la région $z > 0$. Cette asymétrie de l'absorption laser est responsable de l'asymétrie observée pour $\alpha_\infty = 1.58$ dans le dépôt d'énergie de la figure 2.8. Ce résultat est en accord avec l'observation de Zhukov *et al.* [4] relatant qu'une grande asymétrie est obtenue même pour de faibles valeurs du PFT, résultat non-interprété par les auteurs en l'absence d'étude sur la dynamique électronique.

Pour $\alpha_\infty = 4.71$, la densité électronique est plus faible à $t = t_0$ du fait de la plus faible intensité, et le volume ionisé est situé plus loin de l'axe optique du fait du plus grand PFT. Par la suite, la région ionisée se déplace dans la direction du PFT, et conduit à un dépôt d'énergie plus large. La symétrie de ce dépôt est également restaurée par l'absorption plus ténue de l'énergie laser. En effet pour de faibles intensités, la faible densité électronique est insuffisante pour défocaliser l'impulsion de manière significative, conduisant à une absorption symétrique pour les parties inférieure et supérieure de l'impulsion. De plus, l'ionisation commence loin de l'axe optique pour une impulsion présentant un grand PFT. L'intensité laser y étant plus faible dans cette région qu'à proximité de l'axe optique, les effets d'absorption et de défocalisation y sont plus faibles, favorisant la symétrie du dépôt.

Pour résumer ces résultats, l'angle du PFT modifie la direction de propagation du front d'ionisation. Un faible PFT correspond à un front d'ionisation se déplaçant le long de l'axe optique en direction de la source laser, comme c'est le cas pour une impulsion gaussienne. Un plus large PFT conduit à un front d'ionisation évoluant dans le plan transverse, dans la direction du PFT. Si l'intensité laser est assez importante, la partie inférieure de l'impulsion est fortement absorbée, l'intensité crête est alors réduite conduisant à une moindre absorption de la partie supérieure et donc à un dépôt asymétrique. Notons que les densités électroniques ici considérées ne sont pas suffisantes pour entraîner des effets de réflexion significatifs en raison des paramètres laser utilisés.

On présente maintenant dans la figure 2.10 la densité d'énergie absorbée par le réseau dans le plan (x, y) pour $\alpha_\infty = 1, 2.26$ et 4.71. Le dépôt d'énergie est symétrique par rapport à l'axe optique, comme pour l'impulsion gaussienne. Un PFT plus élevé conduit à une diminution de l'intensité laser maximale et du volume d'absorption, qui se situe plus proche du plan focal. Pour la valeur intermédiaire $\alpha_\infty = 2.26$, la position du maximum d'énergie absorbée est déplacée vers la source laser, comme c'était le cas dans le plan (x, z). La forme 3D du volume impacté correspond à un ellipsoïde avec une extension bien plus courte dans la direction y que dans les directions x et z, en raison du PFT.

Les simulations 3D réalisées permettent d'étudier différentes observables en fonction du PFT, et ce pour les trois énergies considérées. La figure 2.11 présente (a) l'énergie totale absorbée

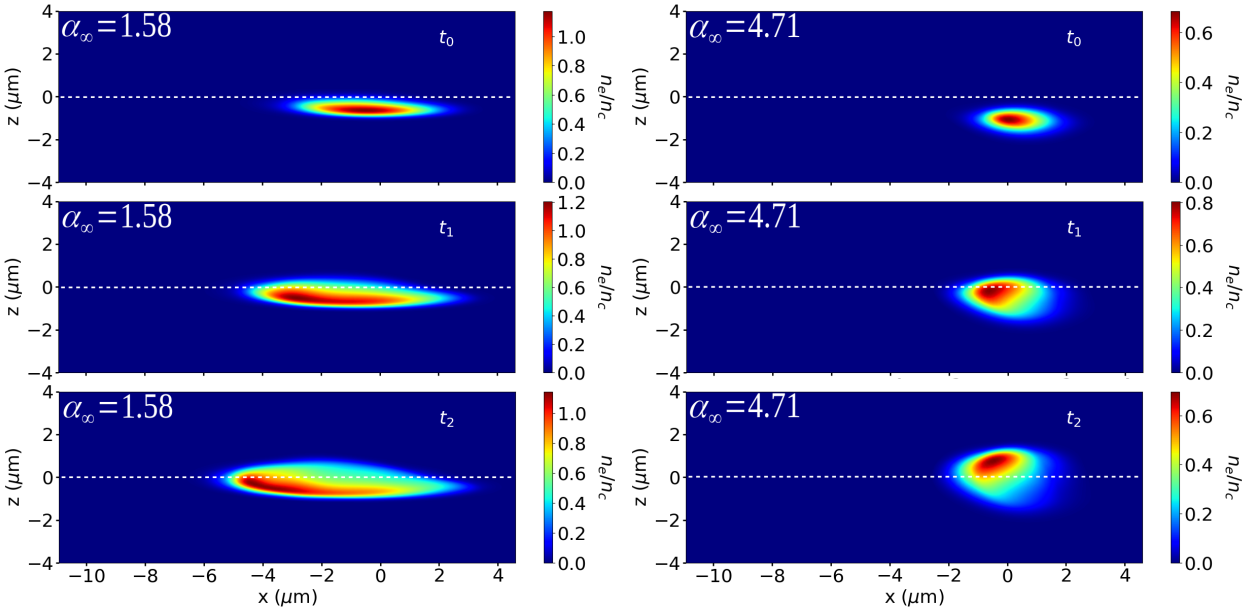

FIGURE 2.9 – Distributions spatiale de la densité électronique à différents instants, pour $W_2 = 180$ nJ et dans les cas $\alpha_\infty = 1.58$ (partie gauche) et $\alpha_\infty = 4.71$ (partie droit). l'instant t_0 correspond à l'instant où le pic d'intensité atteint le bord du domaine $x_b = -14.5$ μm, $t_1 = t_0 + \alpha_\infty \tau_0/4$ et $t_2 = t_0 + \alpha_\infty \tau_0/2$. L'impulsion se propage de la gauche vers la droite. La ligne pointillée représente l'axe de propagation.

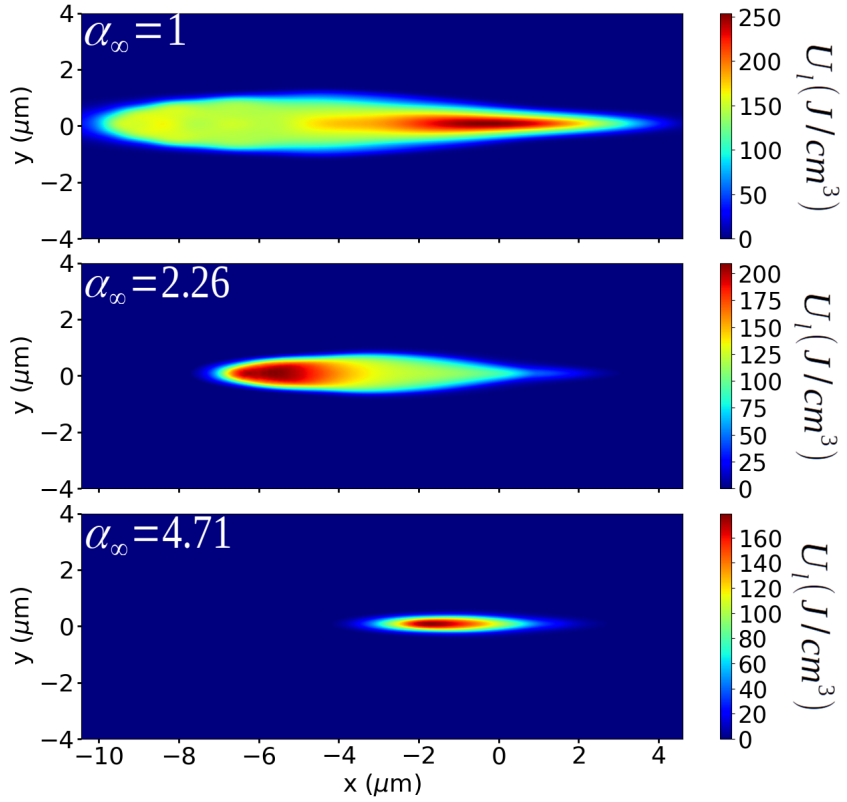

FIGURE 2.10 – Distributions spatiales de la densité d'énergie absorbée dans le plan (x, y) pour $W_p = 180$ nJ pour différents couplages. Le laser se propage de la gauche vers la droite.

par le réseau W_{abs}, (b) le volume effectif du dépôt V_{eff}, (c) la densité effective d'énergie absorbée par le réseau U_{eff} et (d) l'asymétrie transverse du volume affecté en fonction de l'étirement temporel α_∞ pour les trois énergies considérées, $W_1 = 125$, $W_2 = 180$ et $W_3 = 250$ nJ. L'énergie totale absorbée par le réseau est normalisée par l'énergie de l'impulsion, et le volume effectif est défini comme le volume au sein duquel la densité d'énergie absorbée est supérieure à 100 J/cm^3. La densité effective d'énergie absorbée par le réseau est définie comme le rapport de ces deux grandeurs, soit $U_{eff} = W_{abs}/V_{eff}$. L'asymétrie transverse est définie comme la différence relative d'énergie absorbée entre les régions $z < 0$ et $z > 0$, soit $W_{inf}/W_{sup} - 1$, où W_{inf} et W_{sup} sont les énergies totales absorbées par le réseau dans les régions $z < 0$ et $z > 0$, respectivement. Notons que la valeur de 100 J/cm^3 utilisée pour définir le volume effectif du dépôt est nettement inférieure au seuil permettant d'induire une modification significative de la matière, de l'ordre de 2.5 kJ/cm^3, et correspondant à la température de fusion [26]. Un train ou un burst de quelques dizaines d'impulsions laser avec un taux de répétition suffisant permettrait d'atteindre ce seuil par accumulation.

On constate sur la figure 2.11(a) que l'énergie totale absorbée W_{abs}/W_p augmente avec l'énergie incidente. Notons que 1.5 à 2% de l'énergie laser incidente est transférée au réseau pour l'impulsion gaussienne. Pour une énergie W_p donnée, l'énergie absorbée diminue avec α_∞. La même tendance est observée sur la figure 2.11(b) pour l'évolution du volume effectif V_{eff}. Pour un PFT donné, l'augmentation de l'énergie W_p correspond à une augmentation de l'intensité laser. Comme pour une impulsion gaussienne le volume ionisé est étendu dans les trois directions de l'espace, l'énergie absorbée tout comme le volume impacté sont donc augmentés. Pour une énergie W_p donnée, l'intensité laser maximale diminuant avec l'augmentation du PFT (voir l'Eq. (2.40)), l'énergie absorbée tout comme le volume impacté diminuent également.

Pour les trois énergies considérées ici, la densité d'énergie effective absorbée par le réseau $U_{eff} = W_{abs}/V_{eff}$ (Fig. 2.11(c)) augmente dans un premier temps avec le PFT, jusqu'à un maximum dépendant de l'énergie incidente. Elle décroît ensuite avec une pente d'autant plus importante que l'énergie de l'impulsion est faible. Cela signifie que la diminution de l'énergie totale absorbée par le réseau (Fig. 2.11(a)) peut être compensée par la drastique diminution du volume impacté (Fig. 2.11(b)). Selon l'énergie de l'impulsion, la précision du dépôt d'énergie peut donc être améliorée par l'utilisation d'impulsions avec dérive spatiale en fréquence, par rapport aux impulsions gaussiennes. Ce résultat est notable étant donné que la configuration ici présentée repose uniquement sur la présence d'un PFT, et non pas sur la plus grande localisation de l'intensité généralement recherchée lors de la focalisation spatio-temporelle [1].

L'asymétrie transverse du volume affecté est présenté sur la figure 2.11(d). Elle augmente jusqu'à 12% lorsqu'un couplage spatio-temporel est introduit, indépendamment de l'énergie de l'impulsion. Elle chute ensuite avec l'augmentation du PFT, d'autant plus rapidement que l'énergie de l'impulsion est faible. Comme expliqué précédemment, l'asymétrie de l'interaction apparaît lorsque l'absorption de la partie inférieure de l'impulsion diminue sensiblement

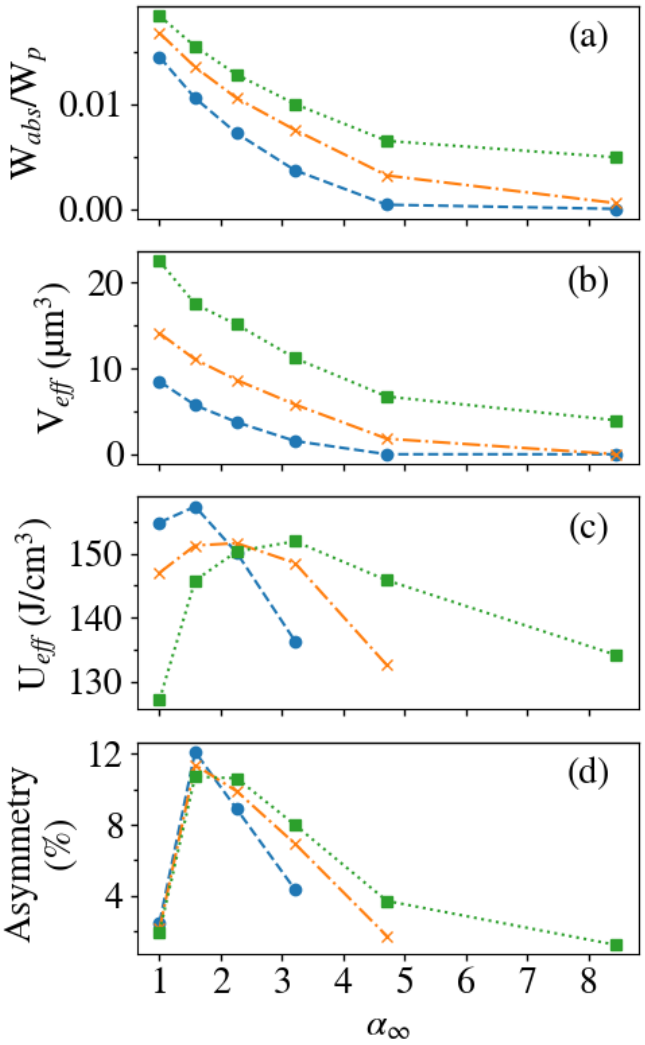

FIGURE 2.11 – Évolution de (a) l'énergie totale absorbé, (b) du volume effectif, (c) la densité effective d'énergie absorbée par le réseau et (d) l'asymétrie transverse du volume affecté en fonction de l'étirement temporel α_∞. Les tirets bleus correspondent à $W_p = 125$ nJ, les tirets-pointillés oranges à $W_p = 180$ nJ, les pointillés verts à $W_p = 250$ nJ.

l'intensité crête, et limite ainsi l'absorption de la partie supérieure de l'impulsion. L'effet est amplifié pour les intensités élevées, correspondant ici aux faibles valeurs de α_∞. L'asymétrie est différente de zéro pour l'impulsion gaussienne en raison de la résolution spatiale des simulations.

En résumé, ces résultats montrent que l'utilisation d'un PFT élevé peut favoriser la localisation du dépôt d'énergie, et impacte fortement la forme de ce dépôt en termes de dimension et de symétrie. À énergie constante de l'impulsion, l'augmentation du PFT conduit à une structure plus symétrique, une dimension longitudinale réduite et une plus large dimension transverse dans la direction du couplage. Cependant, un fort PFT peut également entraîner un dépôt d'énergie inhomogène si l'énergie laser est assez importante. La figure 2.12 présente la distribution de la densité d'énergie absorbée par le réseau pour une impulsion telle que

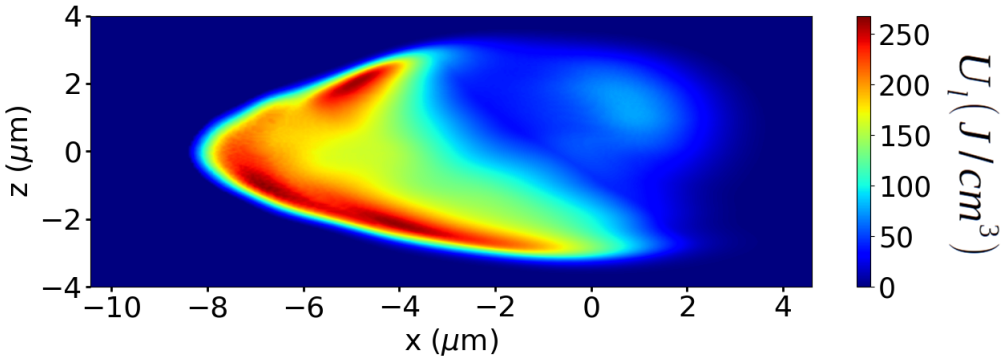

FIGURE 2.12 – Distribution spatiale de la densité d'énergie absorbée dans le domaine (x, z) pour $\alpha_\infty = 4.71$ et $I_p = 50$ TW/cm^2. Le laser se propage de la gauche vers la droite.

$W_p = 310$ nJ et $\alpha_\infty = 4.71$ ($I_p = 50$ TW/cm^2). On peut constater que le dépôt est fortement inhomogène bien que le PFT soit élevé, en raison de la forte intensité laser, et donc de la forte densité électronique écrantant la propagation de l'impulsion. La meilleure localisation de l'énergie et la symétrie disparaissent donc en raison de l'énergie accrue de l'impulsion. Il est donc clair qu'en conditions paraxiales, le contrôle de la forme des structures et de la position du dépôt requiert une intensité laser modérée, proche du seuil d'interaction.

2.3.3 Contrôle du rapport d'aspect des structures

La section 2.3.2 a montré qu'une faible intensité favorise un dépôt d'énergie localisé proche du plan focal, et également homogène et symétrique dans le cadre de la focalisation spatio-temporelle. Les impulsions d'intensité proche du seuil d'interaction présentent donc un intérêt pour le contrôle de la forme des structures crées par laser. On peut alors chercher à contrôler le rapport d'aspect des structures, c'est-à-dire le rapport de la longueur du dépôt d'énergie le long de l'axe de propagation, sur sa largeur le long de l'axe du couplage. Cette sous-section étudie l'évolution du rapport d'aspect en fonction du PFT autour de l'intensité seuil d'interaction. Dans la silice, pour une durée de l'ordre de 100 fs et $\lambda = 800$ nm, ce seuil est de l'ordre de 20 TW/cm^2 [17, 20]. Cette valeur correspond au dépôt d'énergie dans le plan (x, z) présenté dans la figure 2.8 pour $\alpha_\infty = 4.71$. Le dépôt correspondant est relativement symétrique et homogène. L'étude qui suit considère les intensités $I_p = 18$, 20 et 22 TW/cm^2 pour les même valeurs du couplage que celles présentées dans le Tableau 2.2.

La figure 2.13 présente la densité d'énergie absorbée par le réseau dans le domaine (x, z) pour une intensité de 20 TW/cm^2, et pour $\alpha_\infty = 1$ (impulsion gaussienne), $\alpha_\infty = 4.71$ et $\alpha_\infty = 8.45$. Comme dans la sous-section précédente, l'augmentation du PFT conduit à un net élargissement de la dimension transverse des structures. La densité maximale d'énergie absorbée est quant à elle réduite. Puisque l'intensité est proche du seuil d'ionisation, on constate des dépôts bien plus homogènes que dans les simulations précédentes. L'augmentation du PFT conduit également à rapprocher légèrement le dépôt de la source laser. Ceci est dû à l'augmentation de la durée de l'impulsion et donc de la fluence avec la distance

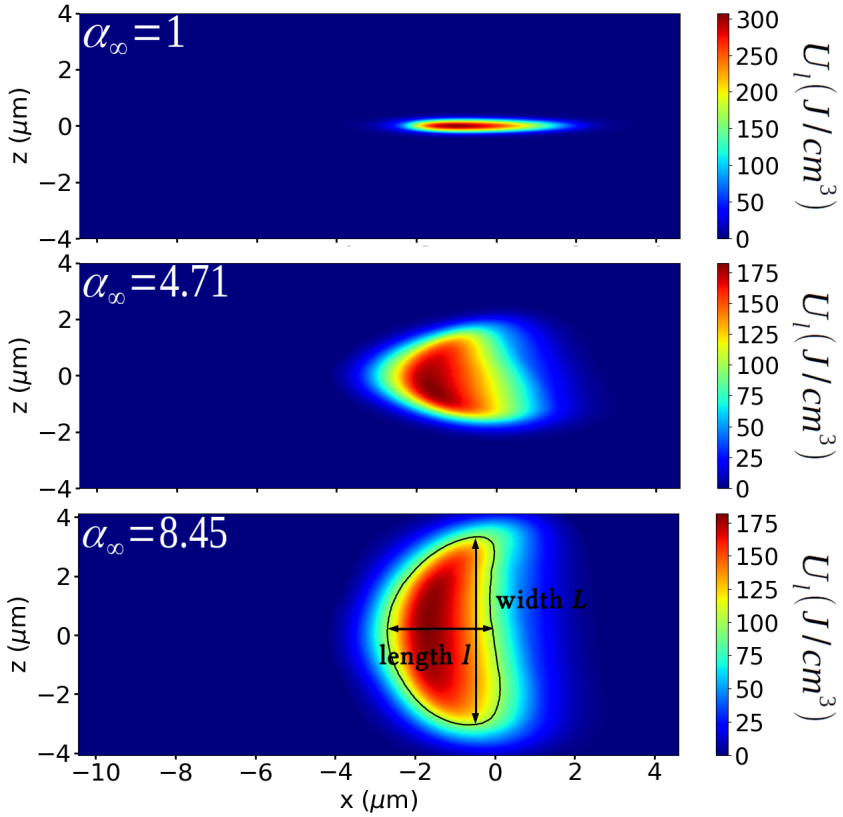

FIGURE 2.13 – Distributions spatiales de la densité d'énergie absorbée dans le plan (x, z) pour $I_p = 20$ TW/cm^2 pour différents couplages. Le contour noir pour $\alpha_\infty = 8.45$ délimite la région $U_l = 100$ J/cm^3 et permet de définir la longueur et la largeur de la structure, respectivement par les flèches horizontale et verticale. Le laser se propage de la gauche vers la droite.

au plan focal, déclenchant par conséquent l'ionisation plus loin de ce dernier (voir Fig. 2.9). Cela explique également la réduction de la densité maximale d'énergie absorbée avec l'augmentation du PFT, puisque l'absorption de l'intensité laser commence dans ce cas plus loin du plan focal.

La figure 2.14 présente (a) l'énergie totale absorbé par le réseau W_{abs}, (b) le volume effectif du dépôt V_{eff}, (c) la densité effective d'énergie absorbée par le réseau U_{eff} et (d) l'asymétrie transverse du volume affecté en fonction de l'étirement temporel α_∞ pour les trois intensités considérées, $I_1 = 18$, $I_2 = 20$ et $I_3 = 22$ TW/cm^2. Ces quantités sont définies de la même manière que dans la sous-section 2.3.2. On observe sur la figure 2.14(a) que les plus hautes intensités correspondent à une valeur plus élevée de l'énergie absorbée relative W_{abs}/W_p. Contrairement au cas précédent, l'augmentation du PFT conduit globalement à légèrement augmenter l'énergie totale absorbée (relative à l'énergie de l'impulsion). On peut attribuer cette augmentation à une plus grande fluence pour les PFT plus élevés, réduisant ainsi l'intensité seuil d'ionisation. On note également la présence d'un minimum ténu pour le cas $\alpha_\infty = 1.58$ qui sera discuté par la suite. Le volume effectif V_{eff} présenté sur la figure

2.14(b) est d'autant plus important que l'est l'intensité, et s'accroît avec le PFT. Ce dernier comportement s'explique également par l'énergie plus importante des impulsions présentant un PFT, et par l'élargissement de profil de fluence (voir Fig. 2.6). La densité effective d'énergie absorbée U_{eff} est présentée sur la figure 2.14(c). Elle est légèrement plus élevée pour les plus hautes intensités, et décroît avec l'augmentation du PFT jusqu'à une valeur seuil. Ce comportement diffère fortement de celui observée sur la figure 2.11(c) compte tenu de l'augmentation relative du V_{eff}, ici plus importante que celle de l'énergie absorbée au sein de ce volume. L'asymétrie des structures est présentée sur la 2.14(d). Elle est très similaire à celle de la figure 2.11(d), avec notamment un maximum pour $\alpha_\infty = 1.58$. Bien que la symétrie des dépôts présentés sur ces deux figures soient similaires, les dépôts obtenus pour les intensités proches du seuil sont bien plus homogènes. Remarquons enfin que le maximum de l'asymétrie coïncide avec le minimum d'énergie absorbée sur la figure 2.14(a). Cela s'explique par le développement de la densité électronique en bande de conduction très proche de l'axe optique dans le cas $\alpha_\infty = 1.58$ (voir Fig. 2.9). L'énergie est donc principalement absorbée au niveau de cet axe où l'intensité est maximale, et l'écrantage électronique limite alors l'absorption du reste de l'impulsion. Il en résulte une absorption asymétrique, et au global une moindre absorption. L'augmentation du PFT et le développement de la densité électronique plus loin de l'axe optique rétablit la symétrie du dépôt, tout comme dans la sous-section précédente.

On s'intéresse à présent aux caractéristiques géométrique des structures obtenues. La mesure des dimensions de la structure est réalisée pour $U_l = 100$ J/cm^3. La longueur est mesurée sur l'axe optique et la largeur est définie comme l'extension transverse maximale, comme illustré sur la figure 2.13 pour $\alpha_\infty = 8.45$. La figure 2.15 présente l'évolution de (a) la largeur, (b) la longueur et (c) le rapport d'aspect $R = l/L$ des dépôts d'énergies obtenus pour les intensités $I_1 = 18$ TW/cm^2, $I_2 = 20$ TW/cm^2, $I_3 = 22$ TW/cm^2. Pour les intensités considérées, la largeur du dépôt d'énergie augmente linéairement avec α_∞, en raison de l'élargissement de la dimension transverse des profils d'intensité et de fluence avec le PFT. Ce comportement linéaire est en accord avec la définition du waist effectif donné par l'Eq. (2.35) équivalente à $w_{eff} = \alpha_\infty w_0$. La longueur de la structure diminue avec le PFT avant de saturer vers une valeur constante. Ce raccourcissement provient de la déplétion plus prépondérante de l'intensité pour des durées d'impulsions plus longues à intensité égale. C'est pourquoi l'énergie est majoritairement déposée avant le plan focal pour les grandes valeurs du PFT. On observe pour la même raison un déplacement de la position des structures le long de l'axe x, vers la source laser. Pour les plus hautes valeurs du PFT la longueur devient indépendante de α_∞ puisque la variation relative de la durée devient elle-même indépendante de α_∞ (voir l'Eq. 2.31, avec $\gamma = 1/\alpha_\infty^2 \ll 1$ pour les PFT élevés). Dans ce cas, seule la variation du waist effectif contribue à l'évolution du rapport d'aspect.

L'évolution du rapport d'aspect est présentée sur la figure 2.15(c). Il diminue rapidement avec α_∞, et est indépendant de l'intensité laser considérée. Pour une intensité proche du seuil d'interaction et la configuration laser étudiée ici, l'évolution du rapport d'aspect est

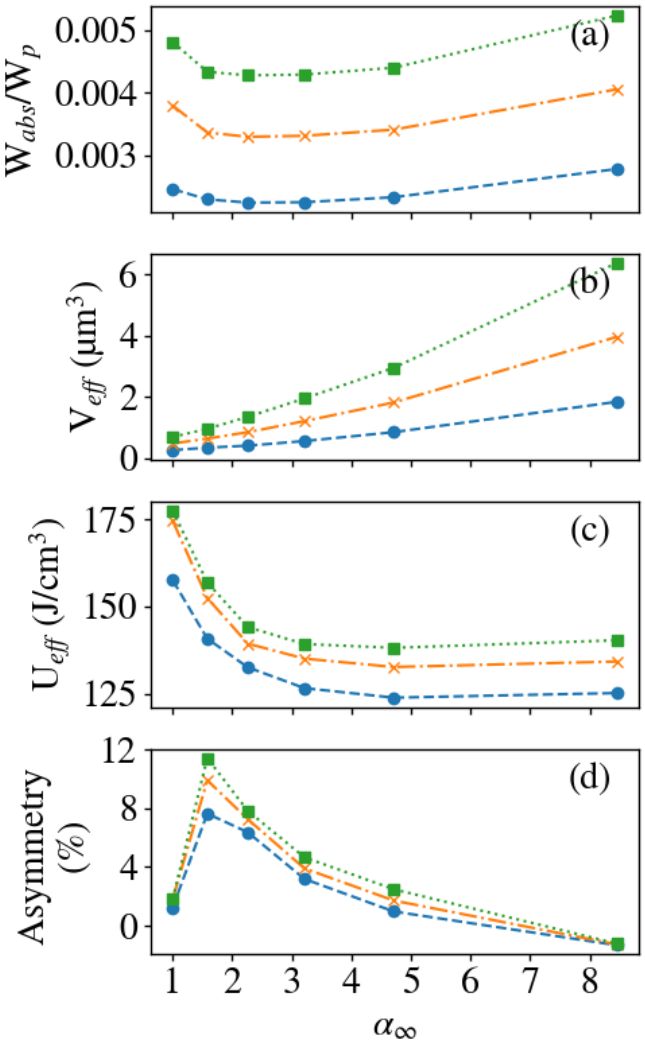

FIGURE 2.14 – Évolution de (a) l'énergie totale absorbée, (b) du volume effectif, (c) la densité effective d'énergie absorbée par le réseau et (d) l'asymétrie transverse du volume affecté en fonction de l'étirement temporel α_∞. Les tirets bleus correspondent à $I_1 = 18$ TW/cm^2, les tirets-pointillés oranges à $I_2 = 20$ TW/cm^2, les pointillés verts à $I_3 = 22$ TW/cm^2.

principalement liée au PFT qui élargit la structure, plutôt qu'à la variation de la durée qui raccourcie sa longueur. Pour l'impulsion gaussienne on obtient $R \simeq 8$ et $R \simeq 0.5$ pour $\alpha_\infty = 8.45$, ce qui représente une variation de plus d'un ordre de grandeur. Un rapport d'aspect $R \simeq 1$ est obtenu pour $\alpha = 4.71$.

Pour des raisons pratiques, il est intéressant de dériver une expression analytique du rapport d'aspect. Une démonstration rigoureuse n'est pas directe, notamment du fait de l'influence de la durée de l'impulsion sur le seuil d'ionisation. On définit le rapport d'aspect comme le rapport entre une longueur effective x_{eff}, et d'une largeur effective w_{eff}. L'évolution linéaire de la largeur de la structure (voir Fig. 2.15)(a)) suggère que le waist effectif $w_{eff} = \alpha_\infty w_0$ décrit correctement ce comportement. Ce waist effectif est indépendant de l'intensité puisqu'il est défini comme la largeur à mi-hauteur du profil de fluence dans la direction du PFT. La

longueur effective x_{eff} est approchée par la relation :

$$x_{eff} = \sqrt{\frac{1+\gamma}{2}} x_R. \tag{2.41}$$

Le comportement de cette longueur effective pour les valeurs asymptotique de $\alpha_\infty = 1/\sqrt{\gamma}$ est similaire à celui observé pour la longueur des structure sur la figure 2.15(b). Pour $\alpha_\infty = 1$ ($\gamma = 1$) correspondant à l'impulsion gaussienne, on obtient $x_{eff} = x_R$. Pour les large PFT où $\alpha_\infty \ll 1$ ($\gamma \to 0$) la longueur est réduite à $x_{eff} = x_R/\sqrt{2}$, ce qui correspond de manière satisfaisante à la diminution relative de la longueur observée sur figure 2.15(b). Le rapport d'aspect est alors défini par $R = 2x_{eff}/\sqrt{2\ln 2} w_{eff}$ et s'écrit :

$$R = \sqrt{\frac{\gamma(1+\gamma)}{\ln 2}} \frac{x_R}{w_0}. \tag{2.42}$$

Cette expression est en bon accord avec le rapport d'aspect obtenu dans les simulations, comme le montre la figure 2.15(c). Cette relation peut potentiellement constituer un support pour le dimensionnement d'expériences sur la focalisation d'impulsions avec dérive spatiale en fréquences.

2.4 Synthèse

En étudiant la propagation libre d'une impulsion avec dérive spatiale en fréquence, une expression analytique de l'évolution spatio-temporelle du champ laser a été obtenue, pour une impulsion présentant uniquement un PFT dans le plan focal. On a pour cela résolu l'équation paraxiale et employé de manière originale le formalisme matriciel de Kostenbauder afin de vérifier la cohérence des résultats. La propagation d'une telle impulsion a ensuite été réalisée à l'aide du code ARCTIC résolvant les équations de Maxwell, couplées à un modèle à deux températures incluant la dynamique électronique. La distribution spatiale de l'énergie déposée dans le volume du matériau a été analysée pour différentes énergies laser et valeurs du couplage spatio-temporel. Les résultats montrent que le PFT peut permettre un meilleur confinement de l'énergie, plus proche du plan focal, en comparaison à une impulsion gaussienne de même énergie. En effet, l'augmentation du PFT à énergie constante conduit à une plus faible intensité dans le plan focal, et ainsi un volume d'absorption plus proche de ce plan. Cependant, une énergie trop importante entraîne une asymétrie du dépôt d'énergie entre la tête et la queue de l'impulsion. En effet, la partie de l'impulsion arrivant en premier dans la région $z < 0$ modifiant la propagation de la partie suivante de l'impulsion, dans la région $z > 0$.

La Fig. 2.16 présente (a) le dépôt d'énergie issu d'un résultat de simulation ($\alpha_\infty = 2.26$ et $I_p = 20$ TW/cm^2), et (b) une structure obtenue lors d'une expérience de SSTF [2]. On constate dans les deux cas une asymétrie du dépôt, la partie inférieure étant plus étendue que la partie supérieure. Les discussions réalisées au cours de ce chapitre constituent un premier

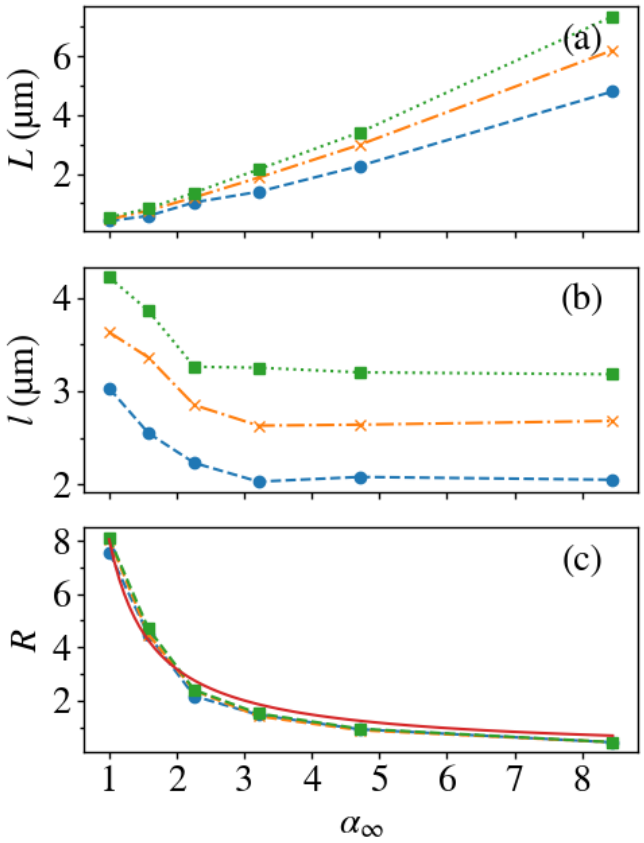

FIGURE 2.15 – Évolution de (a) la largeur (b) la longueur et (c) le rapport d'aspect des structures en fonction de α_∞ pour différentes intensités laser proche du seuil d'interaction. Les cercles bleus correspondent à $I_1 = 18$ TW/cm^2, les croix oranges à $I_2 = 20$ TW/cm^2 et les carrés verts à $I_3 = 22$ TW/cm^2. La courbe rouge dans (c) correspond au rapport d'aspect théorique donné par (2.42).

pas dans la compréhension des processus menant à ce type de dépôt. Si cette comparaison reste qualitative et avec des paramètres laser différents, elle permet de conforter les comportements observés dans les simulations réalisées dans ce travail de thèse. La comparaison directe des simulations avec l'expérience pourrait par la suite permettre de prédire de tels phénomènes avec davantage de précision.

La géométrie des dépôts a également été étudiée en utilisant des impulsions laser d'intensité proche du seuil d'interaction avec le matériau et pour différentes valeurs du couplage spatio-temporel. Les résultats montrent que le PFT permet de diminuer le rapport d'aspect des structures par rapport aux impulsions gaussiennes conventionnelles, jusqu'à un ordre de grandeur. Dans une perspective d'applications potentielles, une formulation analytique de ce rapport d'aspect a été dérivée en fonction du PFT, et présente un très bon accord avec les résultats des simulations.

Enfin, les conditions paraxiales utilisées dans cette étude conduisent à des densités électroniques inférieures à la densité critique, et par conséquent, à une réflexion négligeable de

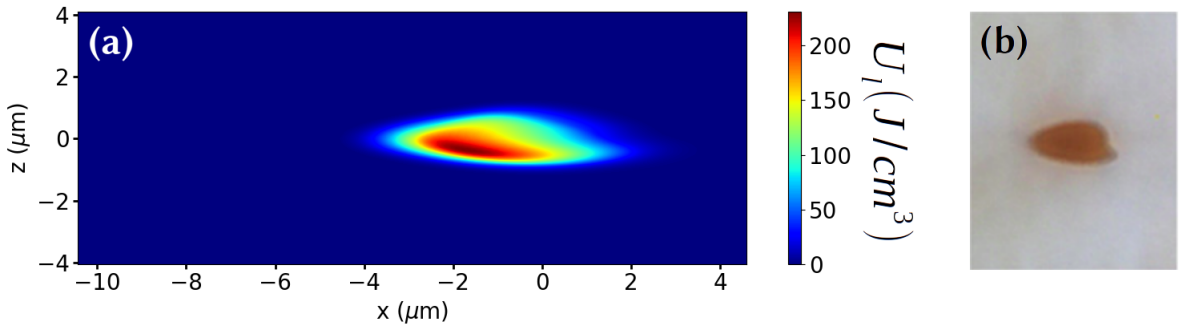

FIGURE 2.16 – (a) Dépôt d'énergie issu d'un résultat de simulation ($\alpha_\infty = 2.26$ et $I_p = 20$ TW/cm^2), (b) Exemple de géométrie obtenue lors d'une expérience de SSTF [2]. Le laser se propage de la gauche vers la droite.

l'énergie laser. Le chauffage du matériau qui en résulte est quant à lui modéré, c'est-à-dire bien en dessous de la température de fusion de la silice. Pour pouvoir conserver les géométries obtenues, de multiples impulsions laser doivent donc être employées pour atteindre des densités d'énergie permettant d'induire des modifications permanentes du matériau. Ceci n'étant pas réalisable avec le code ARCTIC, un modèle de propagation simplifié a été développé et est présenté dans le chapitre suivant.

Références

[1] Robert Kammel, Klaus Bergner, Jens Thomas, Roland Ackermann, Stefan Skupin et Stefan Nolte. "Simultaneous spatial and temporal focusing : a route towards confined nonlinear materials processing". In : *Laser-based Micro- and Nanoprocessing X*. T. 9736. International Society for Optics et Photonics, mars 2016, 97360T.

[2] Fei He, Ya Cheng, Jintian Lin, Jielei Ni, Zhizhan Xu, Koji Sugioka et Katsumi Midorikawa. "Independent control of aspect ratios in the axial and lateral cross sections of a focal spot for three-dimensional femtosecond laser micromachining". In : *New Journal of Physics* 13.8 (août 2011), p. 083014.

[3] Yuedong Li, Juan Song, Juan Song, Qinxiao Zhai, Weiyi Yin, Xinlan Tang et Ye Dai. "Effect of wavefront rotation on the photoionization process by ultrafast laser spatiotemporal focusing". In : *JOSA B* 38.4 (avr. 2021), p. 1040-1047.

[4] Vladimir P. Zhukov, Selcuk Akturk et Nadezhda M. Bulgakova. "Asymmetric interactions induced by spatio-temporal couplings of femtosecond laser pulses in transparent media". In : *JOSA B* 36.6 (juin 2019), p. 1556-1564.

[5] A. G. Kostenbauder. "Ray-pulse matrices : a rational treatment for dispersive optical systems". In : *IEEE Journal of Quantum Electronics* 26.6 (juin 1990), p. 1148-1157.

[6] Qin Li, Wenbo Li, Wei Chu, Yuxiang Cao, Wencheng Zhang, Hongliang Ma, Zuanming Jin et Ye Dai. "Effect of spatio-temporal coupling on ultrafast laser direct writing in glass". In : *Chinese Optics Letters* 17.8 (août 2019), p. 081402.

[7] Charles G. Durfee, Michael Greco, Erica Block, Dawn Vitek et Jeff A. Squier. "Intuitive analysis of space-time focusing with double-ABCD calculation". In : *Optics Express* 20.13 (juin 2012), p. 14244-14259.

[8] Guanghao Zhu, James van Howe, Michael Durst, Warren Zipfel et Chris Xu. "Simultaneous spatial and temporal focusing of femtosecond pulses". In : *Optics Express* 13.6 (mars 2005), p. 2153-2159.

[9] Fei He, Bin Zeng, Wei Chu, Jielei Ni, Koji Sugioka, Ya Cheng et Charles G. Durfee. "Characterization and control of peak intensity distribution at the focus of a spatiotemporally focused femtosecond laser beam". In : *Optics Express* 22.8 (avr. 2014), p. 9734-9748.

[10] Selcuk Akturk, Xun Gu, Pablo Gabolde et Rick Trebino. "The general theory of first-order spatio-temporal distortions of Gaussian pulses and beams". In : *Optics Express* 13.21 (oct. 2005), p. 8642-8661.

[11] Fei He, Han Xu, Ya Cheng, Jielei Ni, Hui Xiong, Zhizhan Xu, Koji Sugioka et Katsumi Midorikawa. "Fabrication of microfluidic channels with a circular cross section using spatiotemporally focused femtosecond laser pulses". In : *Optics Letters* 35.7 (avr. 2010), p. 1106-1108.

[12] Aabid Patel, Yuri Svirko, Charles Durfee et Peter G. Kazansky. "Direct Writing with Tilted-Front Femtosecond Pulses". In : *Scientific Reports* 7.1 (oct. 2017), p. 1-14.

[13] R. Beuton, B. Chimier, P. Quinoman, P. González Alaiza de Martínez, R. Nuter et G. Duchateau. "Numerical studies of dielectric material modifications by a femtosecond Bessel–Gauss laser beam". In : *Applied Physics A* 127.5 (avr. 2021), p. 334.

[14] Kane Yee. "Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell's equations in isotropic media". In : *IEEE Transactions on Antennas and Propagation* 14.3 (mai 1966), p. 302-307.

[15] Jean-Pierre Berenger. "Three-Dimensional Perfectly Matched Layer for the Absorption of Electromagnetic Waves". In : *Journal of Computational Physics* 127.2 (sept. 1996), p. 363-379.

[16] Illia Thiele, Stefan Skupin et Rachel Nuter. "Boundary conditions for arbitrarily shaped and tightly focused laser pulses in electromagnetic codes". In : *Journal of Computational Physics* 321 (sept. 2016), p. 1110-1119.

[17] E. G. Gamaly. "The physics of ultra-short laser interaction with solids at non-relativistic intensities". In : *Physics Reports* 508.4 (nov. 2011), p. 91-243.

[18] O. Dematteo Caulier, K. Mishchik, B. Chimier, S. Skupin, A. Bourgeade, C. Javaux Léger, R. Kling, C. Hönninger, J. Lopez, V. Tikhonchuk et G. Duchateau. "Femtosecond laser pulse train interaction with dielectric materials". In : *Applied Physics Letters* 107 (nov. 2015), p. 181110.

[19] E. Smetanina, P. González de Alaiza Martínez, I. Thiele, B. Chimier, A. Bourgeade et G. Duchateau. "Optical Bloch modeling of femtosecond-laser-induced electron dynamics in dielectrics". In : *Physical Review E* 101.6 (juin 2020), p. 063206.

[20] B. Chimier, O. Utéza, N. Sanner, M. Sentis, T. Itina, P. Lassonde, F. Légaré, F. Vidal et J. C. Kieffer. "Damage and ablation thresholds of fused-silica in femtosecond regime". In : *Physical Review B* 84.9 (sept. 2011), p. 094104.

[21] L. Sudrie, A. Couairon, M. Franco, B. Lamouroux, B. Prade, S. Tzortzakis et A. Mysyrowicz. "Femtosecond Laser-Induced Damage and Filamentary Propagation in Fused Silica". In : *Physical Review Letters* 89.18 (oct. 2002), p. 186601.

[22] Gadi Fibich et Alexander L. Gaeta. "Critical power for self-focusing in bulk media and in hollow waveguides". In : *Optics Letters* 25.5 (mars 2000), p. 335-337.

[23] N. M. Bulgakova, Razvan Stoian et A. Rosenfeld. "Laser-induced modification of transparent crystals and glasses". In : *Quantum Electronics* 40.11 (2010), p. 966.

[24] Mingying Sun, Urs Eppelt, Wolfgang Schulz et Jianqiang Zhu. "Role of thermal ionization in internal modification of bulk borosilicate glass with picosecond laser pulses at high repetition rates". In : *Optical Materials Express* 3.10 (oct. 2013), p. 1716-1726.

[25] E. G. Gamaly, L. Rapp, V. Roppo, S. Juodkazis et A. V. Rode. "Generation of high energy density by fs-laser-induced confined microexplosion". In : *New Journal of Physics* 15.2 (fév. 2013), p. 025018.

[26] I. Iosilevskiy, V. Gryaznov et A. Solovev. “Properties of high-temperature phase diagram and critical point parameters in silica”. In : *High Temperatures - High Pressures* 43.2-3 (2014), p. 227-241.

Chapitre 3

Interaction d'un train d'impulsions avec un matériau diélectrique

Sommaire

3.1 Motivation et cadre de l'étude 100
3.2 Modélisation en régime multi-impulsionnel 101
3.2.1 Dérivation d'une équation de Schrödinger non-linéaire 101
3.2.2 Optimisations analytiques 103
3.2.3 Résolution numérique 106
3.2.4 Excitation et relaxation du matériau 109
3.3 Validation du modèle 111
3.3.1 Comparaison au code ARCTIC 111
3.3.2 Comparaison à une expérience en régime multi-impulsionnel 114
3.4 Interaction d'un train d'impulsions avec la silice 118
3.4.1 Influence du taux de répétition 118
3.4.2 Influence de la dérive spatiale en fréquence 120
3.4.3 Influence de la distribution en intensité du train d'impulsions . . . 125
3.5 Synthèse 128
Références 130

3.1 Motivation et cadre de l'étude

Le chapitre précédent était consacré à l'étude de l'interaction avec la silice d'une unique impulsion présentant un PFT, pour des intensités proches du seuil d'interaction et une ouverture numérique modérée. Comme nous l'avons vu, ces faibles intensités favorisent un dépôt d'énergie localisé près du plan focal, et dont le rapport d'aspect peut être contrôlé en ajustant la valeur du PFT. Cependant, dans ces conditions, la densité maximale d'énergie transférée au réseau est de l'ordre de la centaine de J/cm^3. La température de fusion de la silice étant autour de 1700 K, soit 2.5 kJ/cm^3 [1], une unique impulsion ne permet pas d'induire une modification significative et permanente dans la silice. De multiples impulsions doivent donc être utilisées en vu d'atteindre un dépôt d'énergie suffisant en tirant parti de la faible conduction thermique de la silice.

Les simulations du Chapitre 2 ont été réalisées à partir du code ARCTIC reposant sur un solveur des équations de Maxwell à trois dimensions spatiales. Compte tenu de la durée de telles simulations (typiquement 1000 heures CPU pour chaque simulation du Chapitre 2, réalisés sur 2000 processeurs), cette approche est restreinte au cas d'une unique impulsion. Dans la littérature, peu d'études théoriques traitent le cas d'impulsions multiples. Zhukov *et al.* [2] proposent une approche 2D basée sur les équations de Maxwell, en soulignant le temps de calcul déraisonnable que requerrait une approche 3D. Si cette étude décrit l'interaction de plus d'une centaine d'impulsions avec le matériau, il est précisé que le traitement de milliers d'impulsions successives n'est pas accessible compte tenu des ressources numériques disponibles actuellement. Dans ce cadre, les approches 3D reposent donc généralement sur des approches simplifiées des équations de Maxwell. Ainsi, une équation de Schrödinger non-linéaire est utilisée par Caulier *et al.* [3] pour décrire l'irradiation d'un diélectrique par 500 impulsions. Le modèle utilisé suppose que les propriétés optiques du matériau n'évoluent pas entre deux impulsions successives. Il est donc par exemple impossible de traiter le cas de train d'impulsions avec une cadence GHz. De plus, bien que simplifiées, ces approches restent lourdes et requièrent généralement l'utilisation de super-calculateurs. Ce coût numérique important limite par exemple la possibilité de réaliser aisément des études paramétriques, ou bien celle d'implémenter le modèle dans un code hydrodynamique.

L'objectif de ce travail est de palier ces deux limitations en développant un modèle de propagation bien plus efficace en tirant parti des conditions laser modérées utilisées dans ce travail, et en tenant compte de l'évolution des propriétés du matériau entre deux impulsions. Lors de l'irradiation par de multiples impulsions successives, les propriétés du matériau évoluent impulsion après impulsion. On parle d'effet mémoire ou effet d'accumulation. Ces effets peuvent être liés aux variations de pression et de température [4], ou bien à la présence de défauts transitoires ou permanents (voir la sous-section 1.2.5) induits par l'irradiation laser [5, 6]. On s'intéressera ici aux défauts créés dans le matériau. Cet angle d'approche constituera une première démonstration de l'intérêt de la méthode. Le régime multi-impulsionnel sera étudié en faisant varier l'intensité laser, le taux de répétition, la mise en forme spatio-temporelle de

l'impulsion (PFT) ou bien la mise en forme du train d'impulsion lui-même.

La première partie de ce chapitre sera consacrée à la modélisation de la propagation laser à et à la dynamique des défauts en régime multi-impulsionnel. On commencera par dériver une équation type Schrödinger non-linéaire (NLSE) adaptée à la configuration laser considérée dans ce travail. On soulignera que la formulation habituelle de ce modèle, négligeant l'influence du gradient transverse, conduit à des imprécisions notables en présence de couplages spatio-temporels. Une version de NLSE incluant ce gradient transverse sera donc employée. On procédera ensuite à deux optimisations du modèle : (1) une modification de NLSE visant à propager la perturbation non-linéaire du champ plutôt que le champ lui-même, et (2) une approximation visant à approcher des résultats 3D en conservant le temps de calcul de simulations 2D. On discutera ensuite du choix d'un schéma numérique efficace pour la résolution de NLSE. Finalement, on présentera le modèle décrivant la dynamique des défauts transitoires et permanents. La seconde partie de ce chapitre portera sur la validation du modèle développé en le confrontant dans un premier aux résultats du Chapitre 2 obtenus avec ARCTIC, puis à des mesures de l'évolution de la transmission en fonction du nombre d'impulsions [6]. Dans la troisième partie du chapitre seront réalisées diverses études en régime multi-impulsionnel en considérant jusqu'à une centaine d'impulsions successives. L'influence du taux de dérive spatiale en fréquence et la mise en forme du train d'impulsions sur l'absorption de l'énergie et la géométrie du dépôt sera étudiée.

3.2 Modélisation en régime multi-impulsionnel

3.2.1 Dérivation d'une équation de Schrödinger non-linéaire

On cherche ici à adapter l'équation de Schrödinger non-linéaire pour la structuration de matériaux diélectriques, compte tenu de la configuration laser considérée. Les impulsions laser ici étudiées ont une intensité maximale de 20 TW/cm^2, une durée à mi-hauteur de 150 fs, et respectent les conditions paraxiales ($NA \leq 0.3$). Elles présentent par ailleurs une dérive spatiale en fréquence. Ces propriétés suggèrent quelques modifications, détaillées dans ce qui suit, par rapport à la version usuelle de NLSE [7, 8].

L'équation de propagation pour le champ $\vec{E}$ a été dérivée (voir Annexe C) à partir des équations de Maxwell (voir Eqs. 1.67, 1.68, 1.69 et 1.70) :

$$\nabla^2\vec{E} - \vec{\nabla}(\vec{\nabla}\cdot\vec{E}) - c^{-2}\partial_t^2\vec{E} = \mu_0(\partial_t^2\vec{P} + \partial_t\vec{J}). \tag{3.1}$$

Bien que l'on considère un matériau présentant localement une densité électronique, la densité de charge reste globalement nulle. On a donc d'après l'équation de Maxwell-Gauss $\vec{\nabla}\cdot\vec{D} = \vec{\nabla}\cdot\epsilon\vec{E} = 0$, d'où $\vec{\nabla}\cdot\vec{E} = -\vec{E}\cdot\nabla\epsilon/\epsilon$. En décomposant la polarisation en une partie linéaire $\vec{P}^{(1)}$ et une partie non-linéaire $\vec{P}_{NL}$, et en utilisant les relations $\vec{P}^{(1)} = \epsilon_0\chi^{(1)}(\omega)\vec{E}$ et

$\epsilon(\omega) = 1 + \chi^{(1)}(\omega)$, l'équation (3.1) devient :

$$\nabla^2 \vec{E} - \epsilon(\omega) c^{-2} \partial_t^2 \vec{E} = \mu_0 (\partial_t^2 \vec{P}_{NL} + \partial_t \vec{J}) - \vec{\nabla} \cdot \left(\vec{E} \cdot \vec{\nabla} \epsilon / \epsilon \right). \tag{3.2}$$

Dans la dérivation habituelle de NLSE (voir l'Annexe C), le deuxième terme de la partie droite de l'équation est généralement négligé pour traiter la propagation [7, 8] car les gradients de la permittivité ϵ et du champ E sont supposés suffisamment faibles en conditions paraxiales. Cependant, cette hypothèse ne peut être vérifiée qu'*a posteriori* à partir des résultats de la simulation. La longueur de gradient du champ est modifiée en présence d'un PFT, ce qui peut également jouer un rôle dans la propagation. D'après ces arguments, il semble arbitraire de négliger le dernier terme de l'équation (3.2) puisque seule une vérification *a posteriori* permettrait de vérifier que ce terme est effectivement négligeable [1].

On décompose à présent les composantes transverse (directions y et z) et longitudinale (direction de propagation x) de l'opérateur $\nabla^2 = \partial_x^2 + \nabla_\perp^2$, avec $\nabla_\perp^2 = \partial_y^2 + \partial_z^2$. En réalisant la TF temporelle de cette équation (voir l'Annexe B) on obtient :

$$[\partial_x^2 + \nabla_\perp^2 + k^2(\omega)] \widehat{\vec{E}} = -\mu_0 \omega^2 (\widehat{\vec{P}}_{NL} + i\widehat{\vec{J}}/\omega) - \vec{\nabla} \cdot \left(\widehat{\vec{E}} \cdot \vec{\nabla} \widehat{\epsilon} / \widehat{\epsilon} \right), \tag{3.3}$$

avec $k(\omega)^2 = \epsilon(\omega)\omega^2/c^2$. On suppose que le champ est focalisé dans des conditions paraxiales et que le milieu reste modérément ionisé. Dans ces conditions le champ se propage dans la direction x et le vecteur d'onde vérifie [7] $k^2(\omega) = k_x^2 + k_y^2 + k_z^2 \gg k_y^2 + k_z^2$. Le champ linéairement polarisé dans la direction transverse z s'écrit alors $\vec{E} = E_0(x, y, z, t) e^{-(i\omega_0 t - ik_0 x)} \vec{e_z}$, avec E_0 l'enveloppe lentement variable du champ. L'équation (3.3) se réduit alors à une équation scalaire :

$$[\partial_x^2 + \nabla_\perp^2 + k^2(\omega)] \widehat{E_0} = -\mu_0 \omega^2 (\widehat{\vec{P}}_{NL} + i\widehat{J}/\omega) - \partial_z \left(\widehat{E}_0 \partial_z \widehat{\epsilon} / \epsilon \right). \tag{3.4}$$

On décrit ici succinctement les prochaines étapes de calculs. Le détail est présenté dans l'Annexe C. Le vecteur d'onde est d'abord développé sous la forme d'une série de Taylor au deuxième ordre $k(\omega) = k_0 + (\omega - \omega_0)\partial_\omega k(\omega) + (\omega - \omega_0)^2 \partial_\omega^2 k(\omega)$. Cette expression est injectée dans l'équation (3.4) avant de réaliser sa transformée de Fourier temporelle inverse. On se place ensuite dans le repère de la vitesse de groupe de l'impulsion par les transformations $x \to x$ et $t \to t - z/c$, le temps t correspond alors à un temps retardé. On représente maintenant par leur enveloppe lentement variable la polarisation non-linéaire $P_{NL} = P_{NL,0} e^{-(i\omega_0 t - ik_0 x)}$ et la densité de courant $J_{NL} = J_{NL,0} e^{-(i\omega_0 t - ik_0 x)}$. Après avoir appliqué l'approximation d'enveloppe lentement variable, typiquement valable pour des impulsions de durée ≥ 50 fs, on utilise la loi d'Ohm locale et on considère un milieu pour lequel la polarisation est d'ordre trois (c'est-à-dire un milieu présentant un effet Kerr). On a donc $J_0 = \sigma E_0$, avec $\sigma = (N_e e^2/\nu_e m_e)/(1 - i\omega_0/\nu_e)$ la conductivité donnée par le modèle de

1. Dans les simulations réalisées par la suite, ce terme améliore sensiblement la correspondance des résultats avec ceux du code ARCTIC en présence d'un couplage spatio-temporel.

Drude), et $P_{NL,0} = 3\epsilon_0\chi^{(3)}E_0$, avec $\chi^{(3)} = 2n_0n_2I/3E_0^2$ [9]. On obtient alors :

$$\frac{\partial E_0}{\partial x} = \left[\frac{i}{2k}\nabla_\perp^2 - \frac{i}{2}k_2\frac{\partial^2}{\partial t^2} + i\frac{\omega_0 n_2}{c}I - \frac{\omega_0}{2k_0\epsilon_0 c^2}\sigma E + \frac{1}{\epsilon}\left(\frac{\partial\epsilon}{\partial z}\right)\frac{\partial}{\partial z} - \frac{1}{\epsilon^2}\left(\frac{\partial\epsilon}{\partial z}\right)^2 + \frac{1}{\epsilon}\frac{\partial^2\epsilon}{\partial z^2}\right]E_0, \tag{3.5}$$

avec k_2 le coefficient de dispersion de vitesse de groupe. On choisit d'approcher la valeur de la conductivité à sa valeur pour la fréquence centrale du laser $\omega = \omega_0$. Cette hypothèse est valide pour des impulsions lasers dont la fréquence est très grande devant sa largeur spectrale. La largeur spectrale d'une impulsion de durée τ_0 limitée par transformée de Fourier étant $0.44/\tau_0$ [10], cette condition est satisfaite si $\tau_0 \geq 2$ fs ($\lambda_0 = 800$ nm et $\omega_0 = 2.35$ fs^{-1}). En introduisant la section efficace de collision du modèle de Drude (voir l'Eq. (1.13)), et en imposant la conservation de l'énergie liée à l'absorption du champ laser par photoionisation, NLSE prend la forme :

$$\begin{aligned}\frac{\partial E_0}{\partial x} = \Bigg[&\frac{i}{2k}\nabla_\perp^2 - \frac{i}{2}k_2\frac{\partial^2}{\partial t^2} + i\frac{\omega_0 n_2}{c}I - \frac{\sigma_{col}}{2}(1 + i\omega_0/\nu_e)N_e \\ &- \frac{W_G\Omega_{PI}(N_v - N_e)}{2I} + \frac{1}{\epsilon}\left(\frac{\partial\epsilon}{\partial z}\right)\frac{\partial}{\partial z} - \frac{1}{\epsilon^2}\left(\frac{\partial\epsilon}{\partial z}\right)^2 + \frac{1}{\epsilon}\frac{\partial^2\epsilon}{\partial z^2}\Bigg]E_0.\end{aligned} \tag{3.6}$$

On peut simplifier cette équation en tenant compte des conditions laser évoquées au début de cette sous-section. Dans la silice fondue pour $\lambda_0 = 800$ nm, le coefficient de dispersion de vitesse de groupe est $k_2 = 35$ fs^2/mm [10]. La longueur correspondante est $\tau_0^2/k_2 \simeq 460$ mm pour une durée de 150 fs, qui est largement supérieure aux distances de propagation étudiées dans ce travail (quelques dizaines de μm). Par ailleurs, la puissance laser maximale des impulsions considérées dans ce chapitre est de 0.90 MW, inférieure à la puissance critique dans la silice ($P_{cr} = 2.8$ MW). Bien que l'effet Kerr puisse tout de même jouer un rôle dans ces conditions, il sera négligé afin de pouvoir se concentrer sur les autres phénomènes, et ainsi faciliter les analyses. Finalement, l'équation de propagation utilisée dans ce travail prend la forme :

$$\frac{\partial E}{\partial x} = \frac{i}{2k}\left(\frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}\right)E + \mathcal{F}_{\mathcal{NL}}(E), \tag{3.7}$$

avec :

$$\begin{aligned}\mathcal{F}_{\mathcal{NL}}(E) = \Bigg[&-\frac{\sigma_{col}}{2}(1 + i\omega_0/\nu_e)N_e - \frac{W_G\Omega_{PI}(N_v - N_e)}{2I} \\ &+ \frac{1}{\epsilon}\left(\frac{\partial\epsilon}{\partial z}\right)\frac{\partial}{\partial z} - \frac{1}{\epsilon^2}\left(\frac{\partial\epsilon}{\partial z}\right)^2 + \frac{1}{\epsilon}\frac{\partial^2\epsilon}{\partial z^2}\Bigg]E.\end{aligned} \tag{3.8}$$

3.2.2 Optimisations analytiques

Comme plusieurs fois répété au cours de ce manuscrit, ce travail repose sur des conditions d'intensité et de focalisation modérées, respectant l'approximation paraxiale. Dans ces conditions, l'impulsion laser est faiblement absorbée et diffusée par les électrons de conduction

induits dans le matériau irradié. À titre d'exemple, pour une fluence inférieure à 3 J/cm^2 dans la silice (avec $\lambda = 800$ nm, $\tau_0 = 150$ fs, $w_0 = 2$ μm), soit des conditions similaires à celles ici considérées, seule 10% de l'énergie laser est absorbée par le matériau [11].

On cherche à exploiter cette faible absorption afin d'optimiser la résolution numérique de NLSE (Eq. (3.7)). En effet, le champ laser E solution de NLSE correspond à une version perturbée de la solution de l'équation paraxiale E_{pxl}, obtenue analytiquement dans le Chapitre 2 pour une impulsion à dérive spatiale en fréquence (Eq. (2.28)). En notant δE la perturbation non-linéaire du champ paraxial on a :

$$E = E_{pxl} + \delta E, \tag{3.9}$$

où E_{pxl} satisfait :

$$\frac{\partial E_{pxl}}{\partial x} = \frac{i}{2k}\left(\frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}\right) E_{pxl}. \tag{3.10}$$

En injectant l'expression (3.9) dans NLSE (Eq. 3.7) on obtient une nouvelle équation de propagation pour la perturbation δE :

$$\frac{\partial}{\partial x}\delta E = \frac{i}{2k}\left(\frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}\right) \delta E + \mathcal{F}_{\mathcal{NL}}(E_{prx} + \delta E). \tag{3.11}$$

On constate que l'équation (3.11) est très similaire à l'équation d'origine, à la différence près que $|\delta E| \ll |E|$ compte tenu de la faible absorption du champ. Notons que lorsque l'intensité laser diminue la perturbation tend vers 0, et la solution de l'équation (3.11) tend vers la solution paraxiale donnée par l'équation (2.28). Cette dernière étant connue analytiquement, la résolution spatiale nécessaire à la résolution numérique de l'équation pourra être fortement réduite, ce qui lèvera certaines contraintes quant au schéma numérique abordé dans la sous-section 3.2.3. On attend donc un temps de calcul réduit via la réduction de la résolution spatiale, et ce d'autant plus que l'intensité sera modérée. De plus, les impulsions laser gaussiennes présentent mathématiquement une extension spatiale transverse "infinie". Par conséquent, le domaine spatiale nécessaire pour la résolution numérique doit être en pratique bien plus large que la région d'intérêt où a effectivement lieu l'interaction. Cela entraîne une forte augmentation du temps de calcul, d'autant plus si l'on considère trois dimensions spatiales. En propageant la perturbation non-linéaire plutôt que le champ laser, on s'attend à pouvoir restreindre la dimension transverse du domaine à la région où a lieu l'interaction. Finalement, cette méthode permet d'étudier de manière très directe différentes formes d'impulsions (dans notre cas les impulsions gaussiennes et impulsions à dérive spatiale en fréquence) en injectant la solution analytique dans le vide.

On peut s'arrêter à ce stade sur deux observations. Premièrement, on remarque que cette méthode s'approche de la méthode *split-step* [12] dans laquelle le champ est d'abord propagé linéairement (c'est-à-dire dans le vide), avant de calculer le terme non-linéaire. L'intérêt de cette méthode repose sur la possibilité de propager de manière exacte la partie linéaire

du champ dans le domaine spectral (k_y, k_z). Le champ dans l'espace réel doit cependant être calculé numériquement par transformée de Fourier à chaque itération longitudinale. Dans ce travail, la méthode présentée tire parti de la solution exacte pour la partie linéaire du champ, tout en économisant l'utilisation de transformées de Fourier. Deuxièmement, la méthode développée repose sur le calcul d'une perturbation non-linéaire δE, ce qui est justifiée par les conditions laser paraxiale et un milieu modérément ionisé. Il serait tout à fait envisageable de décomposer le champ sous la forme $E = f \times E_{prx}$ afin de propager la fonction de modulation du champ f. Cette méthode pourrait être plus pertinente que la précédente, tout en conservant les mêmes avantages, dans le cas d'une impulsion subissant essentiellement l'effet Kerr dans un milieu très faiblement ionisé (par exemple, une impulsions de forte puissance se propageant dans l'air).

Afin de réaliser des simulations physiques réalistes, les simulations à trois dimensions spatiales sont requises. Pour des impulsions gaussiennes, on peut tirer parti de la symétrie radiale du faisceau pour obtenir un temps de calcul équivalent à un cas 2D. Les impulsions à dérive spatiale en fréquence ne présentant pas cette symétrie radiale, on peut opter pour une approximation reposant elle aussi sur la perturbation modérée du champ laser. Soit une impulsion se propageant dans la direction x et présentant une dérive spatiale en fréquence dans la direction z. On supposera que le champ E présente une distribution gaussienne non perturbée dans la direction y (voir l'Eq. (1.92)). Dans ce cas la perturbation δE présente la même distribution suivant y :

$$\delta E \propto \exp\left(-\frac{1}{1+ix/x_R} \times \frac{y^2}{w_0^2}\right), \tag{3.12}$$

En d'autres termes, la distribution du champ E dans la direction y est celle obtenue pour une propagation sans interaction avec le matériau. Dans les simulations, on s'intéressera aux différentes observables dans le plan (x, z) en $y = 0$ à partir de l'équation (3.12). Il suffit pour cela de déterminer $\partial_y^2 \delta E|_{y=0}$, ce qui donne :

$$\frac{\partial}{\partial x}\delta E = \frac{i}{2k}\left(-\frac{2}{w_0^2(1+ix/x_R)} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}\right)\delta E + \mathcal{F}_{\mathcal{NL}}(E_{prx} + \delta E). \tag{3.13}$$

En résumé, l'équation (3.13) établie dans cette sous-section correspond à un modèle de propagation de la perturbation non-linéaire du champ laser, réduisant la taille du domaine et la résolution spatiale nécessaire pour les simulations. Le calcul analytique de la diffraction dans la direction d'espace y permet d'approcher des résultats à trois dimensions pour des impulsions à dérive spatiale en fréquence en réduisant le problème à deux dimensions spatiales. Ces optimisations vont grandement simplifier les problématiques liées au choix du schéma numérique, ce qui est l'objet de la sous-section suivante.

3.2.3 Résolution numérique

La résolution numérique d'équations aux dérivées partielles doit être abordée par un schéma numérique approprié, en particulier dans les problèmes non-linéaires. Rappelons que l'on cherche ici à simuler l'interaction de quelques dizaines jusqu'à une centaine d'impulsion en conservant un temps de calcul raisonnable, ce qui va contraindre le choix du schéma numérique utilisé. Les schémas aux différences finies reposent sur la discrétisation des opérateurs différentiels. Pour une fonction $u(x,z)$ on a :

$$\frac{\partial u(x,z)}{\partial x} \simeq \frac{u_j^{n+1} - u_j^n}{\Delta x} + O(\Delta x), \tag{3.14}$$

où l'on a discrétisé les coordonnées $x = x_n$ ($\Delta x = x_{n+1} - x_n$) et $z = z_j$ ($\Delta z = z_{j+1} - z_j$), et où l'on note $u(x,z) = u_j^n$. L'opérateur de diffraction donné par le Laplacien transverse prends la forme :

$$\frac{\partial^2 u(x,z)}{\partial z^2} \simeq \frac{u_{j+1}^n - 2u_j^n - u_{j-1}^n}{\Delta z^2} + O(\Delta z^2). \tag{3.15}$$

En vue de discuter le choix d'un schéma numérique, on va ici considérer le cas d'une équation différentielle ordinaire de la forme :

$$\frac{du}{dx} = f(u). \tag{3.16}$$

On écrit le développement en série de Taylor autour $u(x_n) \equiv u^n$, supposée connue :

$$u^{n+1} = u^n + \Delta x \frac{du^n}{dx} + O(\Delta x^2). \tag{3.17}$$

En tronquant cette relation au premier ordre, on aboutit au schéma d'Euler explicite :

$$u^{n+1} = u^n + \Delta x f(u^n). \tag{3.18}$$

Il est également possible d'écrire le développement de Taylor "à l'envers", soit :

$$u^n = u^{n+1} - \Delta x f(u^{n+1}) + O(\Delta x^2), \tag{3.19}$$

que l'on peut également tronquer au premier ordre pour obtenir le schéma d'Euler implicite :

$$u^{n+1} - \Delta x f(u^{n+1}) = u^n. \tag{3.20}$$

Ce schéma est dit implicite puisqu'il fournit une relation relative à l'inconnue u^{n+1}. Les méthodes à mettre en oeuvre dans le cas de schémas implicites sont plus coûteuses numériquement, mais ce défaut est compensé par la stabilité de ces schémas [12]. En poussant à l'ordre deux les développement en série de Taylor, on obtient un schéma implicite très

courant appelé schéma de Crank-Nicolson, précis à l'ordre deux. On a pour résumer :

$$u^{(n+1)} = u^{(n)} + \Delta x f(u^{(n)}) \text{ Euler explicite}; \tag{3.21}$$

$$u^{(n+1)} - \Delta x f(u^{(n+1)}) = u^{(n)} \text{ Euler implicite}; \tag{3.22}$$

$$u^{(n+1)} - \frac{\Delta x}{2} f(u^{(n+1)}) = u^{(n)} + \frac{\Delta x}{2} f(u^{(n)}) \text{ Crank-Nicolson.} \tag{3.23}$$

Notons que le schéma de Crank-Nicolson peut être utilisé pour la résolution de NLSE [3], bien qu'on lui préfère généralement d'autres types de schéma [12]. Considérons l'équation paraxiale de propagation du champ électrique E dans la direction x :

$$\frac{\partial E}{\partial x} = \frac{i}{2k} \nabla_\perp^2 E, \tag{3.24}$$

avec $\nabla_\perp^2 = \partial_y^2 + \partial_z^2$, avec y et z les coordonnées transverses, et r la coordonnée radiale telle que $r = \sqrt{y^2 + z^2}$. Les schémas de résolution explicites sont stables si la condition $\Delta x \ll k_0 \Delta r^2$, ce qui constitue dans la pratique une condition très contraignante. Pour un schéma instable, l'erreur numérique croît de manière exponentielle au cours des itérations, expliquant la nécessité d'une très forte résolution spatiale Δx. Cependant, le procédé d'optimisation présenté dans la sous-section (3.2.3) et visant à propager la perturbation non-linéaire δE du champ compense la perte de stabilité associée à un schéma explicite. En effet, la croissance exponentielle de l'erreur numérique portant sur δE, le calcul du champ total E restera faiblement impacté. Selon le schéma numérique utilisé, l'énergie totale du système peut augmenter ou diminuer, d'autant plus si le schéma est instable. On vérifiera que la stabilité est suffisante en vérifiant simplement la conservation de l'énergie totale lors des simulations.

On utilise ici un schéma explicite d'ordre deux appelé schéma d'Euler modifié. Il est obtenu simplement en ajoutant une étape intermédiaire pour le calcul de u^{n+1}. En reprenant l'Eq. (3.16) :

$$u^{n+1/2} = u^n + \frac{\Delta x}{2} f(u^n), \tag{3.25}$$

$$u^{n+1} = u^{n+1/2} + \frac{\Delta x}{2} f(u^{n+1/2}). \tag{3.26}$$

On a finalement :

$$u^{n+1} = u^n + \frac{\Delta x}{2} f(u^n) + \frac{\Delta x}{2} f(u^n + \frac{\Delta x}{2} f(u^n)). \tag{3.27}$$

Pour l'exemple, considérons l'équation différentielle :

$$\frac{du}{dx} = -\lambda u, \tag{3.28}$$

où $u(0) = 1$, dont la solution exacte est $u(x) = \exp(-\lambda x)$. Les approximations fournies par

les différents schémas sont les suivantes

$$u^{(n+1)} = u^{(n)} \frac{1 - \lambda\Delta x/2}{1 + \lambda\Delta x/2} \text{ Crank-Nicolson} ; \tag{3.29}$$

$$u^{(n+1)} = u^{(n)} \left(1 - \lambda\Delta x + \frac{\lambda^2 \Delta x^2}{4}\right) \text{ Euler modifié.} \tag{3.30}$$

Sur la figure 3.1, on compare les erreurs relatives à la solution analytique de l'équation (3.28) pour les schémas de Crank-Nicolson et Euler modifié. On constate la bonne stabilité des schémas sur l'intervalle considéré, qui présentent une erreur de seulement 4% pour $\lambda\Delta x = 2$. Pour comparaison, une erreur relative de 10^{-4} est obtenue pour $\lambda\Delta x = 0.1$ dans le cas de Crank-Nicolson et pour $\lambda\Delta x = 0.02$ dans le cas d'Euler modifié. On constate donc la stabilité supérieure du schéma de Crank-Nicolson. Cependant, le temps de calcul associé à ce schéma implicite est bien supérieur à celui d'un schéma explicite comme Euler modifié. Grâce à l'optimisation réalisée sur NLSE (sous-sous-section 3.2.2), on pourra se contenter d'un schéma explicite et ainsi profiter d'un gain en temps de calcul.

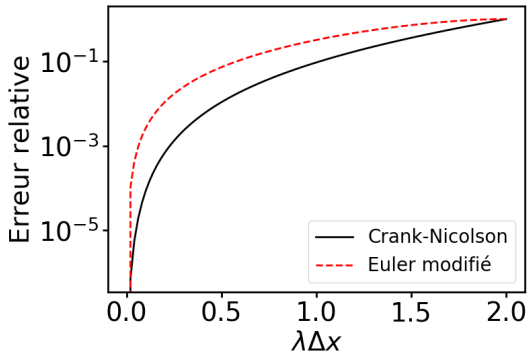

FIGURE 3.1 – Évolution de l'erreur relative pour les schémas de Crank-Nicolson et Euler modifié en fonction de la variable $\lambda\Delta x$.

Pour plus de clarté dans l'expression du schéma final on procède à l'adimensionnement $\bar{x} = x/x_R$ et $\bar{z} = z/w_0$. Le schéma d'ordre deux utilisé pour la résolution de l'Eq. (3.11) s'écrit sous forme itérative :

$$\delta E_j^{n+\frac{1}{2}} = -\left(\frac{\Delta\bar{x}}{2}\right) \times \frac{i}{4}\left(\frac{2\delta E_j^n}{(1 + i\bar{x}_j)} - \frac{\delta E_{j+1}^n - 2\delta E_j^n - \delta E_{j-1}^n}{\Delta\bar{z}^2}\right) + \mathcal{F}_{\mathcal{NL}_j}^{\,n}(E_{prx,j}^n + \delta E_j^n), \tag{3.31}$$

$$\delta E_j^n = -\left(\frac{\Delta\bar{x}}{2}\right) \times \frac{i}{4}\left(\frac{2\delta E^{n+\frac{1}{2}}}{(1 + i\bar{x}_j)} - \frac{\delta E_{j+1}^{n+\frac{1}{2}} - 2\delta E_j^{n+\frac{1}{2}} - \delta E_{j-1}^{n+\frac{1}{2}}}{\Delta\bar{z}^2}\right) + \mathcal{F}_{\mathcal{NL}_j}^{\,n+\frac{1}{2}}(E_{prx,j}^{n+\frac{1}{2}} + \delta E_j^{n+\frac{1}{2}}). \tag{3.32}$$

Pour conclure, on doit noter que le choix du schéma numérique dans le cas de l'équation (3.13)

n'est pas un point central. En effet, le calcul de la perturbation non-linéaire δE reposant essentiellement sur la connaissance du champ E et non pas δE, l'erreur numérique attendue est fortement réduite dans la mesure où $|\delta E| \ll |E|$. Bien que cette condition ne soit pas rigoureusement nécessaire, on pourra vérifier sa validité lors des simulations. Un schéma explicite d'ordre deux est suffisant afin de réaliser les simulations. Le schéma d'Euler modifié a l'avantage de pouvoir être implémenté simplement, et est également flexible puisque l'ordre de la méthode peut être augmenté si besoin.

3.2.4 Excitation et relaxation du matériau

L'effet d'incubation (ou effet mémoire) dans les matériaux irradiés par de multiples impulsions laser peut être lié à différents processus physiques. Les éventuelles variations de température et de densité peuvent par exemple modifier les parties réelles et imaginaire de l'indice optique. L'effet d'incubation peut également être lié au développement de défauts dans le matériau, induisant par exemple des niveaux supplémentaires dans la bande interdite. Ces défauts renvoient soit au piégeage par le réseau d'un électron de conduction et d'un trou (défaut transitoire ou exciton auto-piégé), soit à une réorganisation des liaisons entre les atomes (défaut permanent). Dans la littérature, l'effet d'incubation réfère en premier lieu à la présence de défauts permanents (DP) [5], eux même issus de la relaxation des défauts transitoires. Les notions de défauts transitoires et permanents sont développées davantage dans la sous-section 1.2.5. Il a été montré expérimentalement que les défauts permanents réduisent la valeur du gap de la silice [5, 6], entraînant une augmentation de l'absorption de l'énergie laser impulsion après impulsion. On cherche ici à développer un modèle mettant en évidence ce phénomène. On considérera le niveau le plus couramment utilisé pour les STE, aux alentours de 3 eV pour la silice, ainsi que le défaut permanent le plus courant (centre E'), également situé à 3 eV [13, 2, 14].

On décrit les défauts transitoires et permanents comme des niveaux supplémentaires dans la bande interdite [2, 13, 15]. L'évolution de la densité électronique en bande de conduction N_e s'écrit alors :

$$\partial_t N_e = \frac{N_v - N_{STE} - N_e}{N_v}(\sigma_6 I^6 + \Omega_{col} N_e) + \frac{\sigma_4^{STE} N_{STE} + \sigma_4^d N_d}{N_a} I^4 - \frac{N_e}{\tau_r}, \tag{3.33}$$

avec N_{STE} la densité de STE, N_d la densité de défauts permanents, N_v la densité en bande de valence, N_a la densité atomique, σ_4^{STE} et σ_4^d sont les sections efficaces généralisées d'ionisation multiphotonique à 4 photons ($\lambda_l = 800$ nm), respectivement pour les STE et les défauts permanents. Les trois termes de la partie droite de l'équation correspondent respectivement (1) à l'ionisation multiphotonique et ionisation par impact, (2) l'ionisation multiphotonique depuis les états STE et les défauts permanents, et (3) la recombinaison. Dans ce modèle, on suppose que les taux de création d'électrons de conduction via les défauts transitoires et permanents sont proportionnels à la densité de défauts. C'est pourquoi les taux $\sigma_4^{STE} I^4$ et $\sigma_4^d I^4$ sont respectivement multipliés par N_{STE} et N_d. De plus, on suppose que la densité

de défauts ne doit pas excéder la densité atomique N_a (condition imposée numériquement). Ainsi, les taux de photoionisation pour les défauts transitoires et permanents prennent respectivement la forme $\sigma_4^{STE} I^4 N_{STE}/N_a$ et $\sigma_4^d I^4 N_d/N_a$, et sont maximaux lorsque leur densité atteint N_a.

L'évolution de la densité d'excitons auto-piégés est donnée par :

$$\partial_t N_{STE} = \frac{N_e}{\tau_r} - \frac{N_{STE}}{N_a}\sigma_4^{STE} I^4 - \frac{N_{STE}}{\tau_{STE}}, \tag{3.34}$$

avec τ_{STE} la durée de vie des excitons auto-piégés. Ces STE recombinent vers des défauts permanents avec un taux κ/τ_{STE}, ou vers la bande de conduction avec un taux $(1-\kappa)/\tau_{STE}$. La variation de densité de défauts permanents est donc :

$$\partial_t N_d = \kappa \frac{N_{STE}}{\tau_{STE}}. \tag{3.35}$$

Afin de conserver la charge électrique totale, l'Eq. (3.35) devrait inclure un terme $-\sigma_4^d I^4 N_d/N_a$. Cependant, ce terme correspondrait à un dépeuplement des défauts permanents, ce qui n'est pas cohérent avec leur nature permanente.

La figure 3.2 résume le modèle ici présenté ainsi que les taux associés aux différents processus. Les électrons de conduction sont produits par l'ionisation des électrons de valence, et recombinent ensuite vers les états STE, qui peuvent eux-mêmes être excités vers la bande de conduction. Les STE recombinent soit vers la bande de conduction, soit vers des défauts permanents.

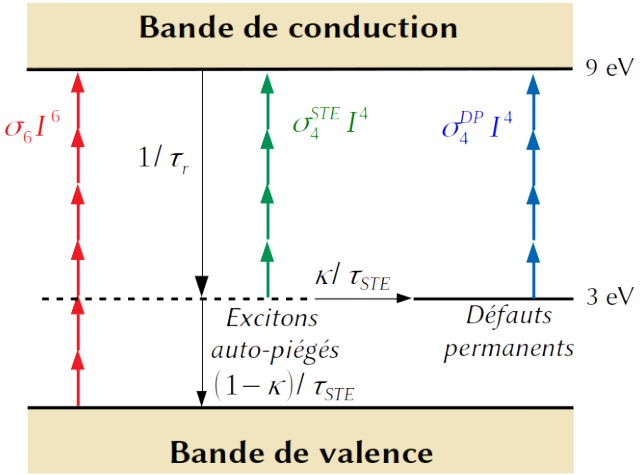

FIGURE 3.2 – Illustration de la dynamique et des taux de création des défauts excitons auto-piégés et des défauts permanents.

Le tableau 3.1 résume les paramètres fixés pour les simulations. Les paramètres laser (longueur d'onde, waist et durée) sont choisis identiques à ceux du Chapitre 2. On étudie la silice en conservant également les mêmes paramètres que dans le Chapitre 2. On fixe le délai

TABLE 3.1 – **Paramètres laser et matériaux utilisés pour les simulations [13, 16, 17, 18, 19].**

Paramètre	Symbole	Valeur
Longueur d'onde	λ_0	800 nm
Waist (à mi-hauteur)	$\sqrt{2\ln 2}w_0$	1 μm
Durée (à mi-hauteur)	$\sqrt{2\ln 2}\tau_0$	150 fs
Taux de répétition	ΔT	4 ps
Densité de la silice	ρ_0	2.2 g/cm^3
Indice de réfraction	n_0	1.45
Bande interdite	U_g	9 eV
Capacité calorifique du réseau	C_l	1.6 J/cm^3/K
Susceptibilité linéaire	$\chi^{(1)}$	1.11
Fréquence de collision effective	ν_e	3 fs^{-1}
Durée de relaxation électron-réseau	τ_{el}	1 ps
Section efficace généralisée	σ_6	5.78×10^{-66} m^{-3} s^{-1} (m^2/W)$^{-6}$
Niveau des des STE et centres E'	U_{STE}, U_d	3 eV
Durée de vie des STE	τ_{STE}	400 ps
Section efficace généralisée (STE)	σ_4^{STE}	9×10^{-30} m^{-3} s^{-1} (m^2/W)$^{-4}$
Section efficace généralisée (DP)	σ_4^d	5.5×10^{-27} m^{-3} s^{-1} (m^2/W)$^{-4}$
Taux de conversion STE / DP	κ	0.001

entre les impulsions à 4 ps, durée très inférieure à la durée de relaxation des STE (400 ps à température ambiante [13, 20, 21]) afin de mettre en évidence l'effet d'accumulation liés à ces défauts transitoires. La section efficace généralisée pour les STE est celle fournie par Bildé [19], utilisée pour modéliser le déphasage obtenu lors d'une expérience pompe-sonde dans la silice pour une longueur d'onde de 800 nm. La section efficace généralisée pour les défauts permanents est obtenue en interpolant les résultats prédits par le modèle de Keldysh, suivant la même procédure que Grojo *et al.* [13].

3.3 Validation du modèle

Cette section vise à valider le modèle développé. On le compare dans un premier temps au code ARCTIC dans le cas d'une unique impulsion. Dans un second temps, on compare l'évolution de la transmission en fonction du nombre d'impulsions au travail expérimental de Guo *et al.* [6].

3.3.1 Comparaison au code ARCTIC

Dans cette sous-section, on compare de manière qualitative les dépôts d'énergie obtenus avec NLSE et avec le code ARCTIC pour des intensités autour de 20 TW/cm^2 (sous-section 2.3.3) pour différentes valeurs du PFT. On réalise les mêmes 18 simulations correspondant aux intensités $I = 18$, 20 et 22 TW/cm^2 pour $\alpha_\infty = 1$, 1.58, 2.26, 3.21, 4.71 et 8.55.

La figure 3.3 compare les distributions spatiales de la densité d'énergie absorbée dans le plan (x, z) obtenues avec ARCTIC et NLSE pour une intensité de 20 TW/cm^2 et pour différentes valeurs du PFT. La géométrie des dépôts obtenus par le solveur de Maxwell 3D est correctement approchée par le code NLSE [2]. On observe dans les deux cas une diminution de la densité maximale d'énergie absorbée avec α_∞. Le dépôt d'énergie est 30% plus faible avec NLSE.

Les différences observées peuvent être attribuées à différentes causes. Le chauffage plus faible provient de l'approximation analytique pour le traitement de la troisième dimension spatiale (voir sous-section 3.2.2). Cette approximation suppose que le waist du faisceau suit l'évolution d'une impulsion gaussienne en propagation linéaire (dans la troisième direction spatiale y). La valeur minimale du waist dans cette direction correspond donc à la position du plan focal ($x = 0$), la où les résultats du code ARCTIC montrent que le waist minimal est en amont de celui-ci (correspondant à la position de la densité maximale d'énergie déposée). Dans les simulations NLSE, la position de la densité maximale d'énergie déposée correspond donc à un waist plus large, et donc une plus faible intensité entraînant un plus faible dépôt d'énergie.

Notons également que dans ces simulations, la densité électronique atteint des valeurs proches de la limite de validité de NLSE, entre $0.6N_c$ et $0.9N_c$. Pour ces raisons, dans le cas gaussien ($\alpha_\infty = 1$), le dépôt d'énergie obtenu avec NLSE est plus large dans le direction transverse et plus court dans la direction longitudinale. Dans les deux autres cas ($\alpha_\infty = 4.71$ et $\alpha_\infty = 8.45$), cela entraîne une modification de la symétrie du dépôt par rapport à l'axe optique en utilisant NLSE.

Notons enfin qu'en utilisant une intensité plus faible, la correspondance avec le code ARCTIC est améliorée. La figure 3.4 présente la distribution spatiale de la densité d'énergie absorbée dans le plan (x, z) obtenues avec NLSE pour $I = 14$ TW/cm^2 et $\alpha_\infty = 8.45$, à comparer avec le même cas sur la figure 2.11 avec ARCTIC. L'énergie maximale déposée est de 33 J/cm^3 contre 45 J/cm^3 avec ARCTIC. Là encore, le dépôt d'énergie obtenu avec NLSE est légèrement en amont du plan focal, ce qui correspond à une intensité laser plus faible et entraîne donc un moindre chauffage.

Pour conclure cette sous-section, on présente sur la figure 3.5 le rapport d'aspect des dépôts d'énergie obtenus par les simulations NLSE en fonction de α_∞, que l'on compare au rapport d'aspect théorique (voir Eq. (2.42). On constate comme dans le Chapitre 2 une diminution du rapport d'aspect avec α_∞, et un très bon accord avec les simulations.

La code NLSE développé dans ce travail permet donc d'approcher correctement les résultats du solveur 3D ARCTIC pour des intensités jusqu'à une vingtaine de TW/cm^2, correspondant

2. La géométrie est correctement approchée grâce au traitement analytique de la troisième dimension spatiale. Des calculs purement 2D entraînent des dépôts plus étendus dans la direction longitudinale. De plus, la présence du gradient transverse dans l'équation (3.13) améliore également la correspondance entre les résultats.

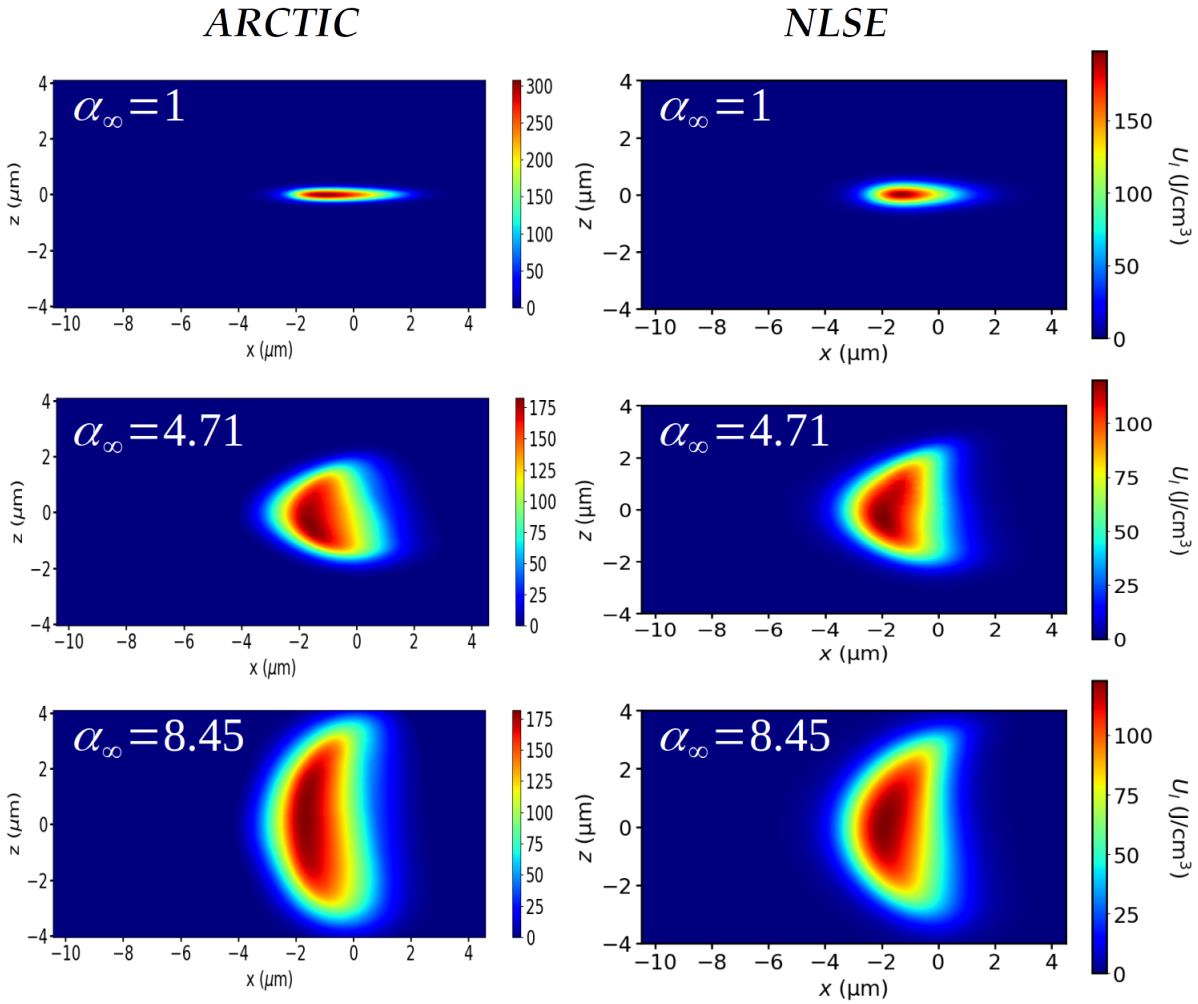

FIGURE 3.3 – Distribution spatiale de la densité d'énergie absorbée dans le plan (x, z) obtenues avec ARCTIC (Maxwell 3D) et NLSE pour $I = 20$ TW/cm^2 et pour différentes valeurs de α_∞.

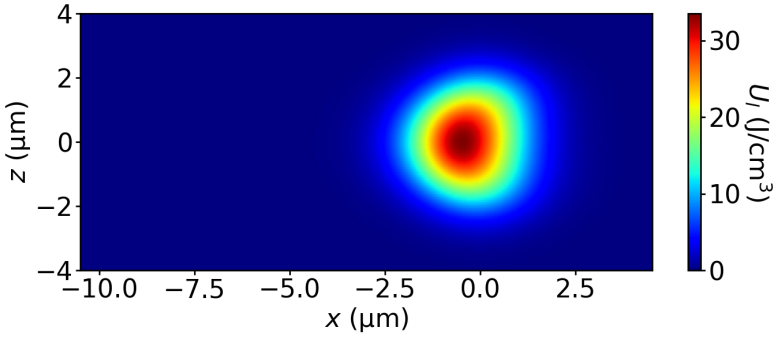

FIGURE 3.4 – Distributions spatiales de la densité d'énergie absorbée dans le plan (x, z) obtenues avec NLSE pour $I = 14$ TW/cm^2 et $\alpha_\infty = 8.45$

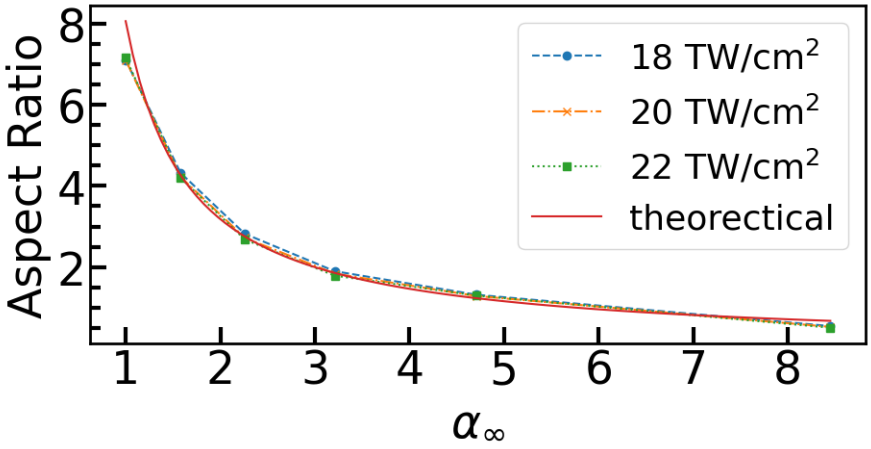

FIGURE 3.5 – Évolution du rapport d'aspect du dépôt d'énergie en fonction de α_∞.

une densité électronique proche de la limite de validité de NLSE. Le temps de calcul maximal pour ces simulations est de 25 minutes sur un processeur, là où cette durée est de l'ordre de 1000 heures au totale pour les simulations ARCTIC. Le modèle développé présente donc un intérêt pour approcher des résultats 3D en régime multi-impulsionnel, à moindre coût numérique.

3.3.2 Comparaison à une expérience en régime multi-impulsionnel

Comme précisé dans la sous-section 3.2.4, la présence des défauts permanents diminue la largeur du gap de la silice et augmente l'absorption de l'énergie laser impulsion après impulsion. On cherche ici à comparer le modèle d'excitation et de relaxation des défauts à des résultats expérimentaux en régime multi-impulsionnel. Cela permettra de valider le modèle développé et vérifier sa capacité à rendre compte des tendances observées expérimentalement.

Le travail de Guo *et al.* [6] réalise une série de tirs dans un échantillon de silice, dans des conditions laser correspondant aux conditions de validité du modèle. Les auteurs étudient en particulier l'évolution de la transmission en fonction du nombre d'impulsions. L'intensité laser est choisie proche du seuil d'ionisation et la cadence de répétition fixée à 50 Hz. Le temps de relaxation des STE étant de 400 ps, et le temps caractéristique de diffusion thermique autour de la microseconde, le délai de 20 ms entre chaque impulsion permet d'exclure l'influence de tout effet d'incubation autre que les défauts permanents. Deux jeux de paramètres laser seront présentés.

Le premier cas correspond aux paramètres suivants : $\lambda_0 = 800$ nm, $\tau_0 = 600$ fs, $w_0 = 2$ μm, $W_p = 243$ nJ, $I_p = 5.13$ TW/cm^2. Pour cette simulation, on considère un nombre $N_p = 100$ impulsions. La résolution spatiale vaut $\Delta x = 75$ nm dans la direction longitudinale et $\Delta z = 67$ nm dans la direction transverse. La résolution temporelle est de 4 fs. Le temps de calcul total pour cette simulation est de 18 heures CPU, soit moins de 12 minutes par impulsion. Nous avons vérifié que cette discrétisation permet la convergence des simulations.

La figure 3.6 présente (a) l'évolution de la densité électronique maximale en fonction du nombre d'impulsions et (b) l'évolution de la transmission en fonction du nombre d'impulsions, obtenue dans l'expérience de Guo *et al.* et par nos simulations. Sur la Figure 3.6.(a), la densité électronique est portée à 5% de la densité critique pour la première impulsion, l'intensité de 5.13 TW/cm^2 étant autour du seuil d'ionisation. Durant la dernière impulsion, cette densité électronique atteint 25% de la densité critique. Expérimentalement, Guo *et al.* rapportent une densité électronique maximale de $0.3N_c$, les simulations sont donc en bon accord avec l'expérience. Remarquons que la méthode de mesure de densité électronique n'est pas précisée, mais repose très probablement sur le modèle de Drude et sur la mesure du coefficient de transmission. Sur la Figure 3.6.(b) on observe la diminution de la transmission avec le nombre d'impulsions, en corrélation avec l'augmentation de la densité maximale sur la Figure (a). Dans l'expérience la transmission initiale est de 0.93 environ, et chute à 0.84 pour la centième impulsion. Dans les simulations, les transmissions initiale et finale sont respectivement 0.96 et 0.88, soit une valeur de 3 à 4% supérieure.

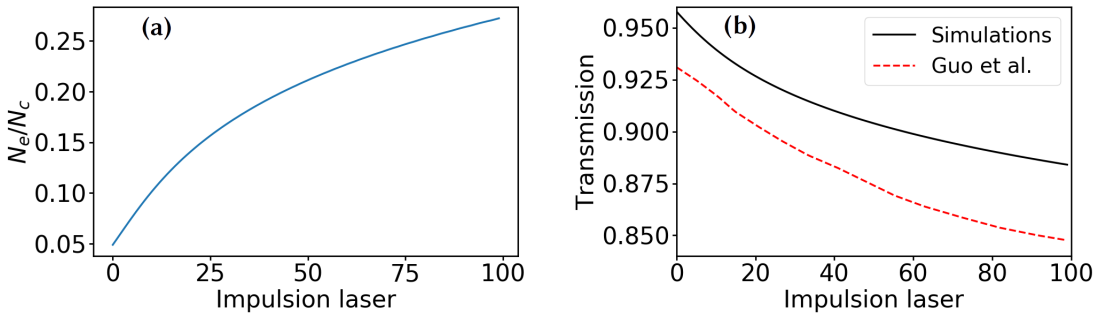

FIGURE 3.6 – (a) Évolution de la densité électronique en fonction du nombre d'impulsions dans la silice et (b) évolution de la transmission en fonction du nombre d'impulsions dans la silice mesurée expérimentalement par Guo *et al.*, comparée aux simulations numériques.

Cette surestimation de la transmission dans les simulation est cohérente au regard des valeurs de densités maximales rapportées, plus élevée dans l'expérience que dans les simulations. À cet écart près, l'évolution globale des deux courbes est similaire. Ce résultat vérifie donc la capacité du modèle développé à rendre compte des tendances attendues dans ce type d'expériences.

La Figure 3.7 présente la distribution spatiale de la densité de défauts après les impulsions 1, 50 et 100. Pour $N_p = 1$, la distribution est localisée proche du plan focal ($x = 0$), et la distribution présente une forme symétrique. Le nombre d'impulsions augmentant, la distribution se déplace vers la source laser. La forme de la distribution est allongée et tend à se rapprocher de la forme de larme caractéristique du dépôt d'énergie pour les impulsions gaussiennes [22]. Ce phénomène provient de la présence des défauts développés de plus en plus proche de la source laser, initiant l'absorption plus loin du plan focal. Cette élongation vers la source laser a été rapportée expérimentalement par Momgaudis *et al.* via des mesures de déphasage lors d'expériences pompe-sonde dans la silice [23]. Cela démontre encore une

fois la capacité du modèle à rendre qualitativement compte de phénomènes liés à la présence des défauts en régime multi-impulsionnel.

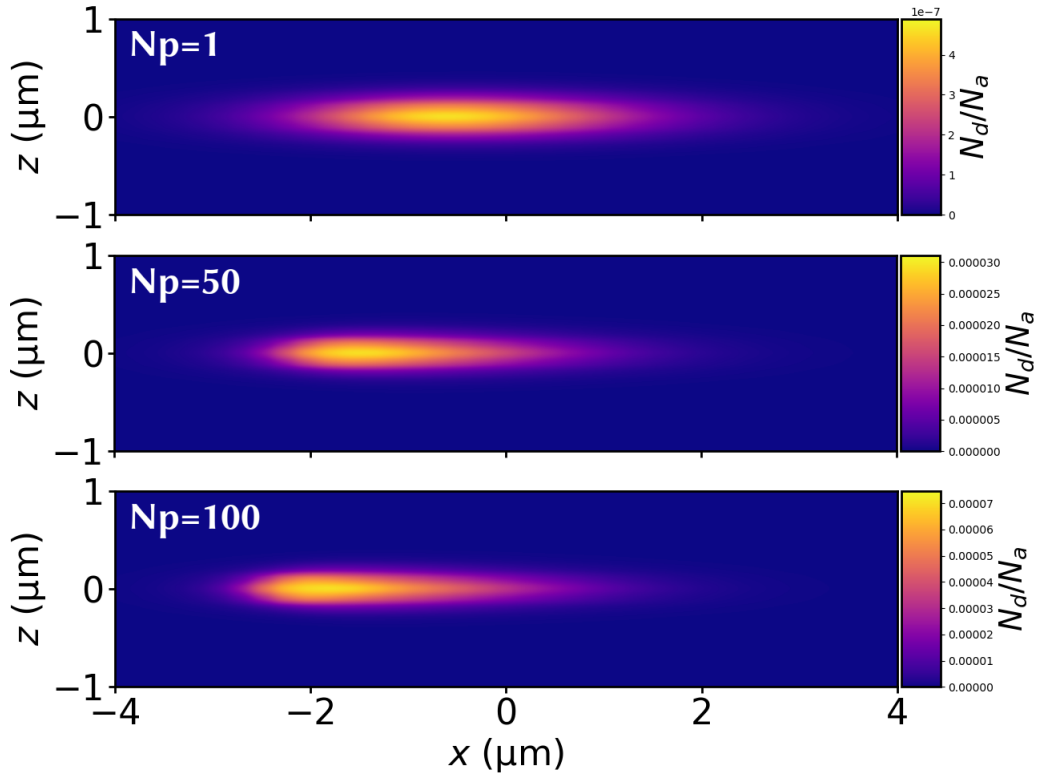

FIGURE 3.7 – Distribution spatiale de la densité de défauts permanents pour différents nombres d'impulsions, avec x la direction de propagation et z la direction transverse. Les impulsions se propagent de la gauche vers la droite.

Bien que l'objectif de ce travail ne soit pas de procéder à l'ajustement des paramètres pour rendre compte d'un comportement particulier, on peut illustrer rapidement cette possibilité. On augmente pour cela d'un facteur 3 la section efficace d'ionisation multiphotonique des électrons de valence ($\sigma_6 = 2 \times 10^{-65}$ m^{-3} s^{-1} (m^2/W)$^{-6}$), et d'un facteur 1.5 celle des défauts permanents ($\sigma_4^d = 8.25 \times 10^{-27}$m^{-3}s^{-1}(m^2/W)$^{-4}$). La Figure 3.8 présente (a) l'évolution de la densité électronique maximale en fonction du nombre d'impulsions avec les paramètres ajustés et (b) l'évolution de la transmission en fonction du nombre d'impulsions, obtenue dans l'expérience de Guo *et al.* et par les simulations de ce travail [3]. Par rapport au jeu de paramètres précédent, on observe une diminution globale de la transmission liée à l'augmentation de σ_6. L'augmentation de σ_4^d est également nécessaire afin d'augmenter le développement des défauts permanents, induisant eux même l'excitation d'électrons de conduction, et ainsi obtenir une pente similaire aux résultats expérimentaux de Guo *et al.*.

3. Seules 30 impulsions sont ici considérées car les simulations sont réalisées avec le même maillage et la même taille de domaine. Au delà la 30ème impulsion, le bord du domaine commence à être ionisé et les résultats suivants sont invalide.

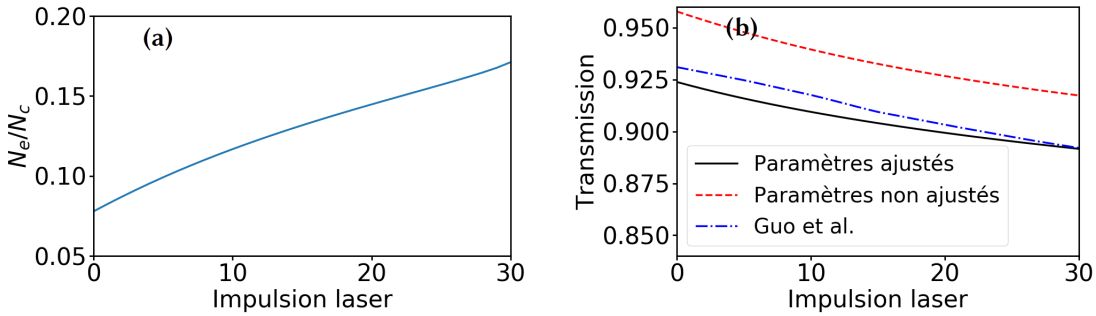

FIGURE 3.8 – Évolution de la (a) densité électronique en fonction du nombre d'impulsions dans la silice et (b) évolution de la transmission en fonction du nombre d'impulsions dans la silice.

La seconde configuration laser utilisée par Guo *et al.* correspond aux paramètres suivants : $\lambda_0 = 800$ nm, $\tau_0 = 1100$ fs, $w_0 = 2$ μm, $W_p = 281$ nJ, $I_p = 3.26$ TW/cm^2. Le même maillage et la même taille de domaine sont utilisés. La Figure 3.9 présente l'évolution de la transmission en fonction du nombre d'impulsions, obtenus par Guo *et al.* [6], et par les simulations avec les paramètres ajustés ou non. Les paramètres ajustés correspondent ici à une augmentation d'un facteur sur 3 la section efficace d'ionisation multiphotonique des électrons de valence, et d'un facteur 40 sur celle des défauts permanents ($\sigma_4^d = 2.2\times10^{-25}\mathrm{m}^{-3}\mathrm{s}^{-1}(\mathrm{m}^2/\mathrm{W})^{-4}$). Dans le cas des paramètres non ajustés, la transmission évolue très faiblement avec le nombre d'impulsions (moins de 1% au total), là où une diminution de 7% est observée expérimentalement sur 10 impulsions. Cette tendance est correctement approchée avec les paramètres ajustés, la forte diminution de la transmission à chaque impulsion étant assurée par une importante création de défauts permanents, eux-mêmes favorisant la création d'électrons de conduction.

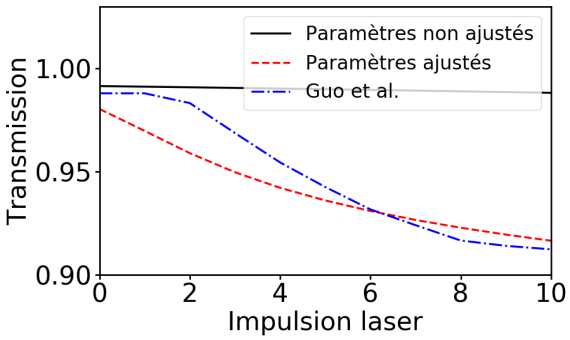

FIGURE 3.9 – Évolution de la transmission en fonction du nombre d'impulsions dans la silice.

Pour conclure, cette section a permis de vérifier la capacité du modèle à retrouver les tendances obtenues expérimentalement dans le travail de Guo *et al.* [6]. Le temps de simulation par impulsion dans les cas étudiés ici est de l'ordre de quelques minutes à une dizaine de minutes. Cela constitue un gain de deux à trois ordres de grandeur par rapport au code ARCTIC qui requiert plutôt quelques centaines d'heures. Il est donc possible de réaliser des

études paramétriques en considérant un grand nombre d'impulsions avec un temps de calcul raisonnable.

3.4 Interaction d'un train d'impulsions avec la silice

Cette section vise à appliquer le modèle développé au régime multi-impulsionnel en considérant des trains d'impulsions laser. Dans cette section, le modèle développé précédemment sera appliqué à la structuration de la silice par un train d'impulsion femtoseconde. L'objectif est d'étudier l'importance de la mise en forme spatio-temporelle des impulsions et du train d'impulsions afin de contrôler l'énergie déposée dans le matériau, la géométrie et la position du dépôt. On s'intéressera dans un premier temps à l'influence du délai entre deux impulsions, puis à l'influence du taux de dérive spatiale en fréquence, sur l'absorption de l'énergie laser en fonction de l'intensité. On étudiera ensuite le rôle de la distribution de l'intensité au sein du train d'impulsions. Les simulations se restreindront à des cas où la densité électronique maximale satisfait $N_e < 0.8N_c$ afin de respecter l'approximation paraxiale (pas de réflexion de l'impulsion laser). Les paramètres laser seront tels que la densité d'énergie maximale absorbée par le réseau restera au voisinage de la température de fusion (1700 K soit 2.7 kJ/cm^3 [1]).

3.4.1 Influence du taux de répétition

Dans ce travail, on se concentre sur de très hautes cadences laser, typiquement supérieures au GHz. On s'intéresse à l'influence de cette cadence dans un train de 40 impulsions gaussiennes avec un intensité de 12 TW/cm^2 chacune. On considère trois délais entre deux impulsions successives : $\Delta T = \tau_{STE}/100 = 4$ ps, $\Delta T = \tau_{STE}/10 = 40$ ps et $\Delta T = \tau_{STE}/2 = 200$ ps. Les taux de répétion correspondants sont respectivement 5 GHz, 20 GHz et 250 GHz.

La figure 3.10 présente l'évolution de la température du réseau en fonction du temps pour les trois délais considérés. Dans les trois cas, l'augmentation non linéaire de l'énergie absorbée souligne la présence d'un effet mémoire. Les densités d'énergie finales absorbées par le réseau sont 3000 J/cm^3 pour $\Delta T = 4$ ps, 2600 J/cm^3 pour $\Delta T = 40$ ps et 2300 J/cm^3 pour $\Delta T = 200$ ps. Les incréments correspondants de la densité d'énergie pour la dernière impulsion sont de 115, 100 et 90 J/cm^3. Pour comparaison, la densité d'énergie absorbée après la première impulsion est de 25 J/cm^3. On constate donc une influence sensible du taux de répétition sur le chauffage du matériau.

La figure 3.11 présente (a) l'évolution de la densité électronique maximale et (b) la transmission en fonction du temps. Entre la première et la dernière impulsion, la densité électronique augmente, conjointement à la diminution de la transmission. Dans les deux cas cette évolution est légèrement non linéaire. La densité électronique maximum pour la première impulsion est de $0.125N_c$ correspondant à une transmission de 0.97. Les pentes associées aux évolutions de la densité électronique et la transmission sont d'autant plus importantes que le délai est

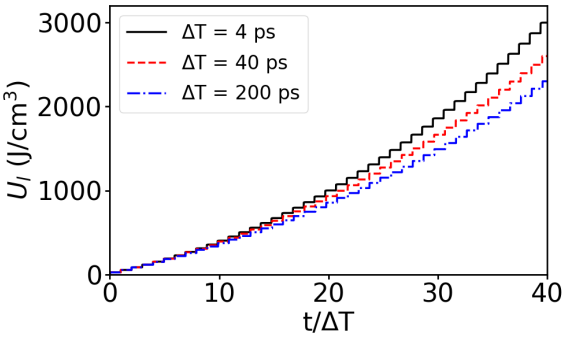

FIGURE 3.10 – Évolution de la densité d'énergie du réseau en fonction du temps t normalisé par le délai inter-impulsion ΔT, pour ΔT =4, 40 et 200 ps.

court, traduisant une meilleure absorption de l'énergie laser et donc un meilleur chauffage du réseau.

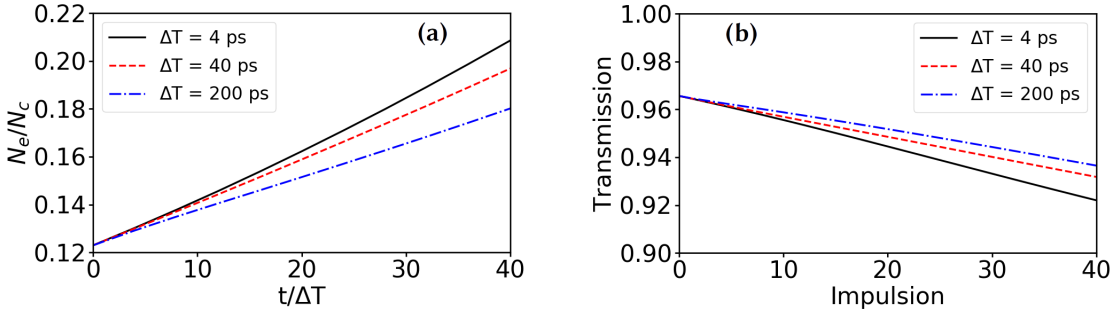

FIGURE 3.11 – Évolution de (a) la densité électronique entre deux impulsions et (b) la transmission fonction du temps pour différents délais entre deux impulsions. Le temps t est normalisé par le délai inter-impulsion ΔT.

La figure 3.12 présente (a) l'évolution de la densité de STE et (b) la densité de défauts permanents en fonction du temps. Sur la figure 3.12.(a) on constate que la densité de STE augmente avec le nombre d'impulsions. Cette augmentation est marquée pour $\Delta T = 4$ ps où la densité de STE atteint $0.14N_a$. Pour $\Delta T = 40$ ps et $\Delta T = 200$ ps, ces densités sont respectivement $0.047N_a$ et $0.012N_a$. Dans ces deux cas, la forte relaxation des STE est favorisée par le long délai entre les impulsions. La très faible densité de STE dans le cas où $\Delta T = 200$ ps, soit un délai proche du temps de relaxation des STE ($\tau_{STE} = 400$ ps), montre que l'effet d'accumulation n'est ici pas directement lié aux STE. Sur la figure 3.12.(b) on constate que la densité de défauts permanents augmente également avec le nombre d'impulsions. La formation des défauts permanents étant liée à la relaxation des STE, on observe le comportement opposé à celui des STE. Pour le court délai $\Delta T = 4$ ps, les STE n'ont pas le temps de recombiner sur la durée totale du train d'impulsion (160 ps), et une très faible densité de défauts permanents est obtenue. Dans le cas du long délai $\Delta T = 200$ ps, les STE ont fortement recombiné entre deux impulsions, maximisant le production de défauts permanents.

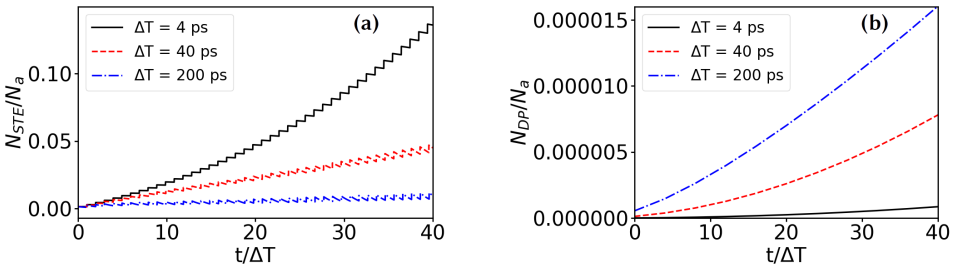

FIGURE 3.12 – Évolution de (a) la densité d'excitons auto-piégés et (b) la densité de défauts permanents en fonction du temps pour différents délais entre deux impulsions. Le temps t est normalisé par le délai inter-impulsion ΔT.

On peut donc discerner différents régimes d'accumulation selon le taux de répétition du laser. Pour des délais très courts devant le temps de relaxation des STE, l'accumulation de l'énergie laser absorbée après chaque impulsion est liée à l'ionisation des STE. Pour des délais de l'ordre de ce temps de relaxation, l'accumulation est liée aux défauts permanents. Dans les simulations réalisées, un effet d'accumulation plus important est obtenu pour un délai court. Cela s'explique par la plus forte densité d'excitons auto-piégés par rapport aux défauts permanents, ces derniers étant issus des STE avec un taux $\kappa = 10^{-3}$. L'effet d'incubation lié aux STE est donc plus important pour les courts délais, auquel cas les STE n'ont pas le temps de relaxer durant l'irradiation par le train d'impulsion.

3.4.2 Influence de la dérive spatiale en fréquence

On étudie dans cette sous-section l'influence du taux de dérive spatiale en fréquence pour deux intensités différentes, 10 et 12 TW/cm^2 par impulsion. On considère trois valeurs du taux de dérive spatial en fréquence, représenté par α_∞ (voir l'Eq. (2.33)) : $\alpha_\infty = 1$ (impulsion gaussienne), $\alpha_\infty = 1.58$ et $\alpha_\infty = 7.95$. On fixe le délai entre deux impulsions à 4 ps pour se placer dans des conditions où l'effet d'accumulation est principalement engendré par les STE.

La figure 3.13 présente la densité d'énergie absorbée par le réseau après la première et la dernière impulsion, pour un train d'impulsions de 10 TW/cm^2 par impulsion, pour trois valeurs du taux de dérive spatial en fréquences, représenté par α_∞. La valeur de α_∞ influence la géométrie du dépôt, comme déjà observé et discuté dans le Chapitre 2. Pour la première impulsion ($N_p = 1$), le dépôt est symétrique par rapport à l'axe optique ($z = 0$) et par rapport au plan focal ($x = 0$). La valeur maximale de la densité d'énergie absorbée est similaire quel que soit α_∞, autour de 4.5 J/cm^3. Pour la dernière impulsion ($N_p = 170$) on observe une légère asymétrie du dépôt par rapport au plan focal ; le maximum du dépôt étant en amont de celui-ci. La densité d'énergie absorbée est maximale pour les plus faibles valeurs de α_∞, avec 3020 J/cm^3 pour $\alpha_\infty = 1$, 2790 J/cm^3 pour $\alpha_\infty = 1.58$ et 2460 J/cm^3 pour $\alpha_\infty = 7.95$.

La figure 3.14 présente l'évolution de (a) la densité électronique maximale, (b) la densité

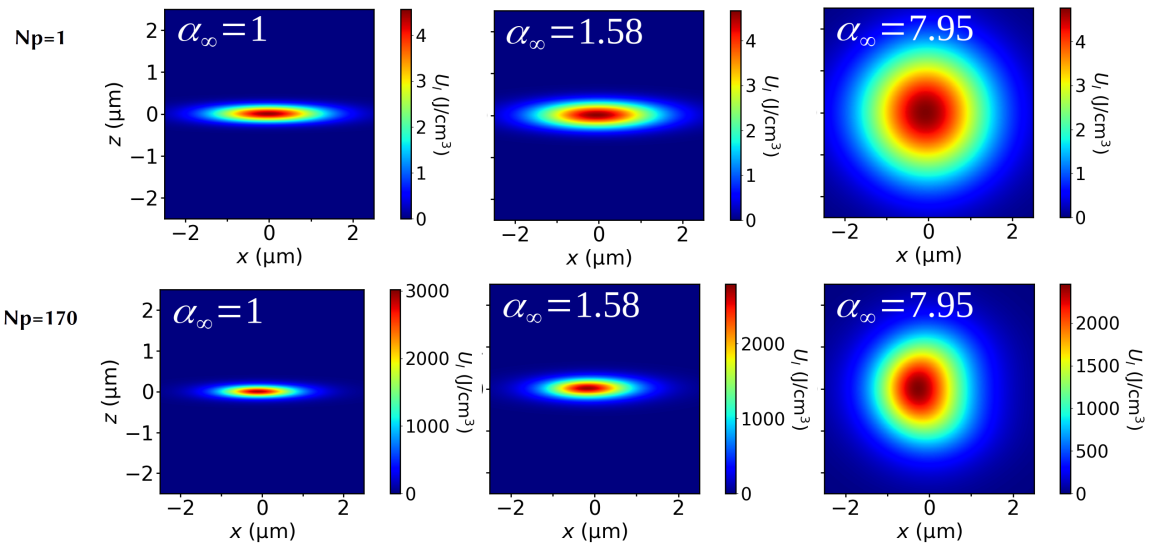

FIGURE 3.13 – Densité d'énergie U_l absorbée par le réseau, irradié par un train d'impulsions à 10 TW/cm^2, et pour différentes valeur du taux de dérive spatiale en fréquence α_∞.

maximale de STE, (c) la transmission et (d) la densité maximale d'énergie absorbée en fonction du temps. La densité électronique, la densité de STE et la température du réseau augmentent au cours du temps, en corrélation avec la diminution de la transmission. La densité électronique est maximale pour les plus faibles valeurs de α_∞, comme observé dans les résultats du Chapitre 2 (voir Fig. 2.13), comportement pouvant sembler contre-intuitif puisque les plus hautes valeurs de α_∞ correspondent à des durées d'impulsion globalement plus longues, et donc des fluences plus importantes partout sauf au plan focal. Cependant, en raison de cette fluence plus élevée, le seuil d'absorption est réduit et l'impulsion est davantage absorbée par le matériau en amont du plan focal. Il en résulte une diminution plus rapide de l'intensité crête le long de l'axe optique pour les grandes valeurs de α_∞, et donc une densité électronique plus faible. Le volume d'absorption est donc agrandi (voir Fig. 3.13) et la température maximale réduite. La transmission rend également compte de ce comportement (Fig.3.14.(c)), étant plus faible pour le grandes valeurs de α_∞, malgré la densité électronique moins importante.

La figure 3.15 présente la densité d'énergie absorbée par le réseau pour la première et la dernière impulsion, pour un train d'impulsions de 12 TW/cm^2 par impulsion. Dans ce cas, 42 impulsions sont suffisantes pour atteindre la température de fusion de la silice (1700 K) avec $\alpha = 7.95$. Pour cette valeur plus élevée de l'intensité, on observe une asymétrie du dépôt par rapport au plan focal dès la première impulsion. Le chauffage est légèrement plus important pour les faibles valeurs de α_∞, toujours en raison leur plus forte intensité dans la plan focal. Après la 42ème impulsion, l'asymétrie par rapport au plan focal devient assez marquée, notamment pour les plus grandes valeurs de α_∞. La densité d'énergie absorbée est maximale pour les plus faibles valeurs de α_∞, avec 3120 J/cm^3 pour $\alpha_\infty = 1$, 2300 J/cm^3 pour $\alpha_\infty = 1.58$ et 1840 J/cm^3 pour $\alpha_\infty = 7.95$. Par rapport au train d'impulsions à 10 TW/cm^2,

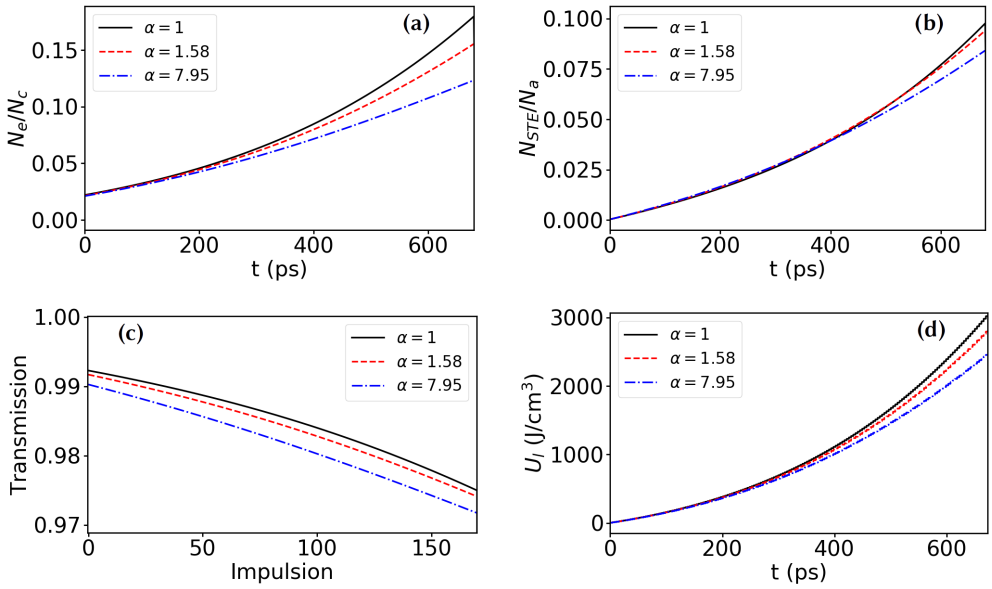

FIGURE 3.14 – Évolution de (a) la densité électronique maximale, (b) la densité maximale de STE, (c) la transmission et (d) la densité d'énergie absorbée par le réseau en fonction du temps. Différentes valeur du taux de dérive spatiale en fréquence α_∞ sont considérées. Le train contient 170 impulsions séparées de 4 ps. L'intensité de chaque impulsion est 10 TW/cm^2.

un écart plus important est observé entre ces valeurs. En effet, après irradiation par une impulsion à 10 TW/cm^2, la densité d'énergie du réseau était de 5 J/cm^3 indépendamment de α_∞. Pour une impulsions à 12 TW/cm^2, cette valeur est portée à 25 J/cm^3 pour $\alpha_\infty = 1$, à 23 J/cm^3 pour $\alpha_\infty = 1.58$ et 22 J/cm^3 pour $\alpha_\infty = 7.95$. L'effet d'accumulation tend donc à augmenter les écarts observés pour des intensités plus élevées.

La figure 3.16 présente l'évolution de (a) la densité électronique maximum, (b) la densité maximale de STE, (c) la transmission et (d) la densité maximale d'énergie absorbée en fonction du temps. À une exception près, les comportements observés sont identiques à ceux de la figure 3.14. La différence par rapport au train de 10 TW/cm^2 concerne la transmission pour $\alpha_\infty = 1$. En effet à partir de la 15ème impulsion, la transmission devient plus faible pour $\alpha_\infty = 1$ que pour $\alpha_\infty = 1.58$, ce qui n'a pas été observé dans le cas précèdent. Ceci s'explique au regard de la densité électronique. Pour le train à 10 TW/cm^2, les densités restaient proches quel que soit α_∞. Ici l'écart est plus important et se creuse rapidement avec le nombre d'impulsions.

L'augmentation de l'intensité des impulsions permet un chauffage plus rapide du matériau. Pour une impulsion gaussienne, 42 impulsions à 12 TW/cm^2 suffisent pour atteindre 3 kJ/cm^3. Ce nombre est porté à 170 pour des impulsions à 10 TW/cm^2. Cela représente ici une réduction de 70% de l'énergie requise pour un même chauffage. Notons cependant que ce gain est réalisé au détriment de la localisation et la symétrie du dépôt.

Afin d'illustrer la nécessité d'un compromis entre l'intensité laser et le nombre d'impulsion, on

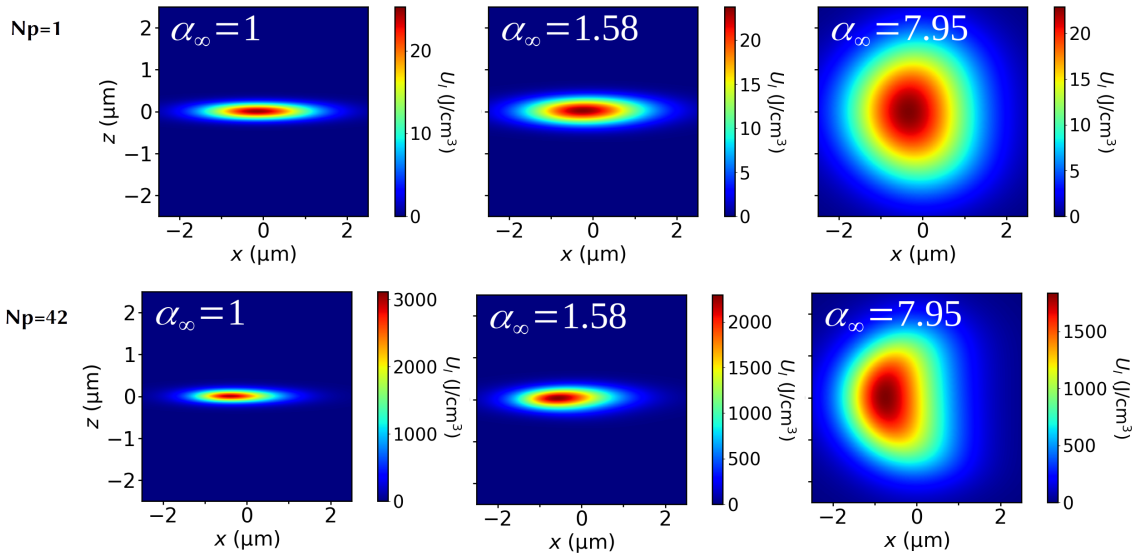

FIGURE 3.15 – Densité d'énergie U_l absorbée par le réseau, irradié par un train d'impulsions à 12 TW/cm^2, et pour différentes valeur du taux de dérive spatiale en fréquence α_∞.

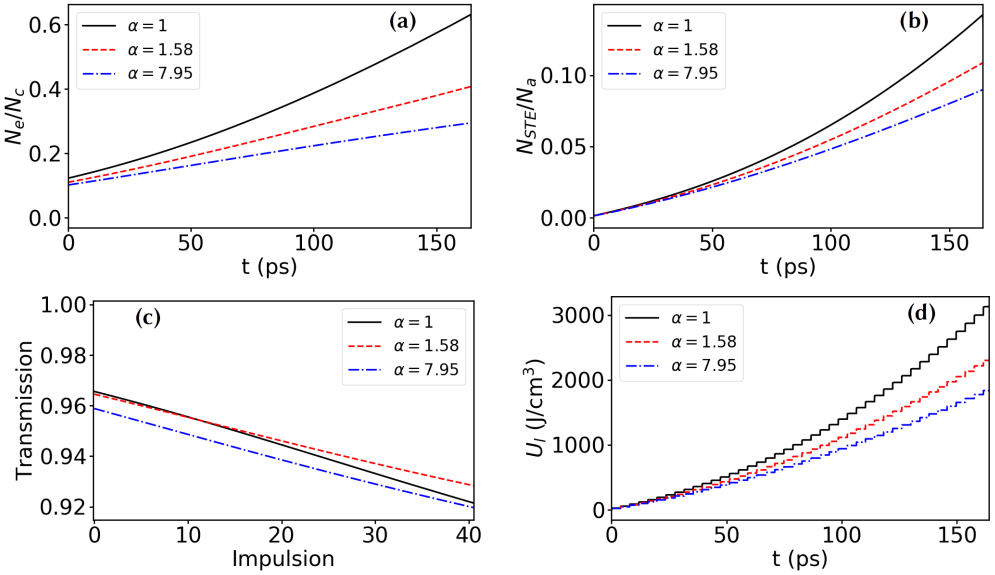

FIGURE 3.16 – Évolution de (a) la densité électronique maximale, (b) la densité maximale de STE, (c) la transmission et (d) la densité d'énergie absorbée par le réseau en fonction du temps. Différentes valeur du taux de dérive spatiale en fréquence α_∞ sont considérées. Le train contient 42 impulsions séparées de 4 ps. L'intensité de chaque impulsion est 12 TW/cm^2.

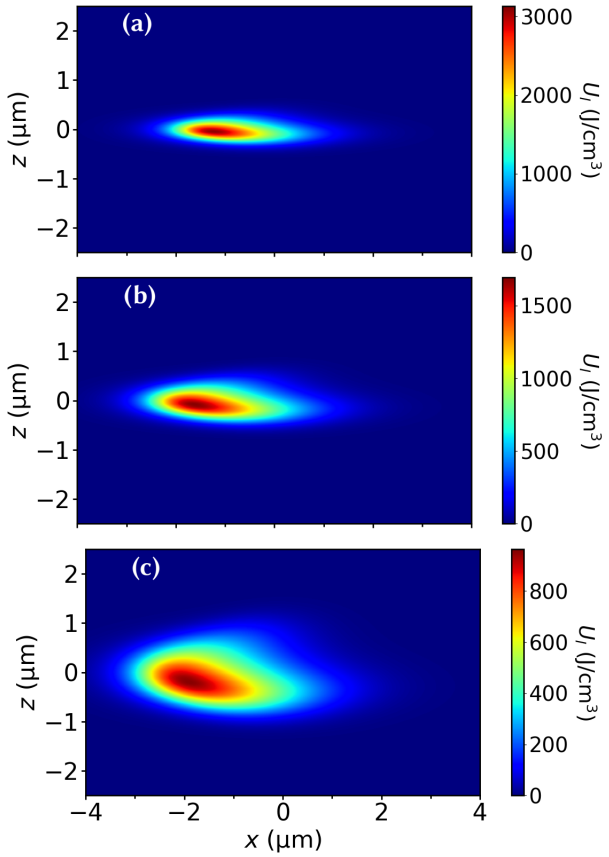

FIGURE 3.17 – Densité d'énergie du réseau après irradiation par (a) 27 impulsions à 14 TW/cm^2, (b) 12 impulsions à 14 TW/cm^2, 6 impulsions à 18 TW/cm^2. Le taux de dérive spatial en fréquence correspond à $\alpha_\infty = 1.58$.

simule maintenant l'interaction d'un train d'impulsions pour $\alpha_\infty = 1.58$, avec des intensités de 14, 16 et 18 TW/cm^2 par impulsion. La simulation est stoppée si la densité d'énergie du réseau dépasse 3 kJ/cm^3 ou si la densité électronique dépasse $0.8N_c$ afin de garantir la validité des simulations. La figure 3.17 présente la densité d'énergie absorbée par le réseau à la fin de chaque simulation, pour (a) 27 impulsions à 14 TW/cm^2, (b) 12 impulsions à 16 TW/cm^2, (c) 6 impulsions à 18 TW/cm^2. On constate dans les trois cas un dépôt d'énergie en amont du plan focal, et une asymétrie par rapport à l'axe optique. Ces deux effets étant plus marqués pour les hautes intensités. Pour une intensité à 14 TW/cm^2, le chauffage atteint 3 kJ/cm^3. Dans les deux autres cas, la densité électronique dépasse $0.8N_c$ avant d'atteindre le chauffage désiré.

En conclusion, l'augmentation de l'intensité augmente la densité d'électrons en bande de conduction, ce qui perturbe davantage la propagation et diminue la transmission de l'impulsion laser. Les électrons relaxant vers les STE, un nouveau niveau créé dans la bande interdite. Les électrons relaxant vers ce niveau, plus proche de la bande de conduction, verront leur probabilité d'être excités vers la bande de conduction augmentée lors de l'irradiation par l'impulsion suivante. Ainsi l'intensité doit être suffisamment faible afin d'obtenir

un dépôt d'énergie localisé proche du plan focal (et symétrique en présence d'un couplage spatio-temporel), et suffisamment élevée pour conserver une efficacité raisonnable du dépôt l'énergie laser. Cela nous amène à la mise en forme du train d'impulsion qui peut permettre de favoriser davantage ces deux aspects.

3.4.3 Influence de la distribution en intensité du train d'impulsions

On s'intéresse maintenant à la mise en forme du train d'impulsions, c'est-à-dire à la distribution de l'intensité des impulsions au sein du train. On fixe ici le couplage spatio-temporel à $\alpha_\infty = 7.95$, permettant d'obtenir un rapport d'aspect proche de 1 pour le dépôt d'énergie. On considère un train de 100 impulsions. Dans la sous-section 3.4.2, on a pu voir qu'une intensité crête de 12 TW/cm^2 constituait un bon compromis afin d'obtenir un chauffage rapide du matériau, sans détériorer la précision du dépôt ou sa géométrie. On fixe donc à 12 TW/cm^2 l'intensité maximale d'une impulsion du train.

On considère 4 mises en forme telles que l'énergie totale du train (11 μJ) reste constante :

(a) 10 TW/cm^2 (cas de référence, sans mise en forme) ;

(b) intensité croissant linéairement de 8 à 12 TW/cm^2 ;

(c) intensité décroissant linéairement de 12 à 8 TW/cm^2 ;

(d) intensité croissant linéairement de 8 à 12 TW/cm^2 sur les 50 premières impulsions et décroissant linéairement de 12 à 8 TW/cm^2 sur les 50 dernières.

La figure 3.18 présente la densité d'énergie finale du réseau pour les 4 mises en forme considérées : (a) sans mise en forme, (b) intensité croissante, (c) intensité décroissante et (d) intensité croissante puis décroissante. Dans les 4 cas, on obtient un dépôt proche du plan focal et symétrique par rapport à l'axe optique. En l'absence de mise en forme du train d'impulsion (a), le dépôt est plus symétrique mais l'énergie absorbée est moins importante, avec une densité d'énergie maximale de 975 J/cm^3. Dans les autres cas, la géométrie est similaire mais la densité d'énergie maximale varie. On atteint 1350 J/cm^3 pour (b), 1690 J/cm^3 pour (c) et 1520 J/cm^3 pour (d).

La figure 3.19 présente (a) la densité électronique maximale, (b) la densité maximale de STE, (c) la transmission, et (d) la densité d'énergie absorbée par le réseau en fonction du temps pour les 4 mises en forme considérées. En l'absence de mise en forme (a), l'augmentation monotone et quasi-linéaire de la densité électronique entraîne un comportement similaire pour les STE et l'énergie absorbée, conjointement à la diminution de la transmission. Le dépôt d'énergie reste donc modéré en raison de la plus faible intensité laser. Pour une intensité croissante (b), la densité électronique augmente lentement pendant 300 ps, (environ 75 impulsions) avant une croissance bien plus rapide. Parmi toutes les mises en forme étudiées, ce cas correspond à la densité électronique maximale en fin de simulation puisque l'intensité est maximale à la fin du train d'impulsions. Il en résulte un comportement similaire pour les STE et l'énergie absorbée. La transmission chute plus rapidement après 300 ps. Malgré cette

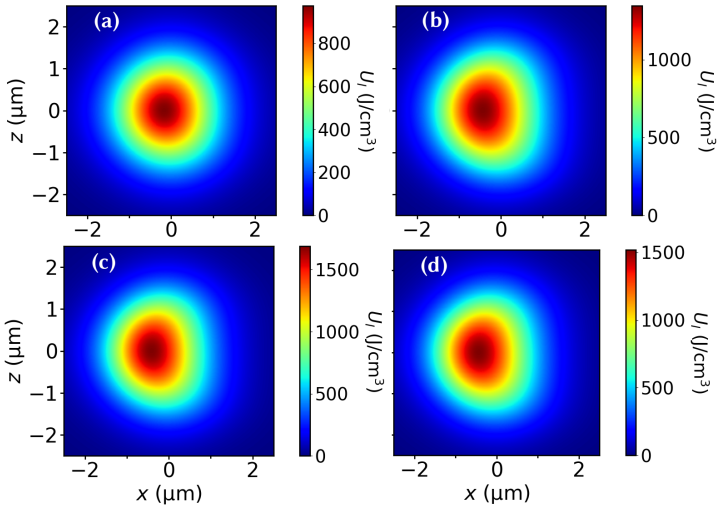

FIGURE 3.18 – Densité d'énergie U_l absorbée par le réseau pour différentes mises en forme du train d'impulsions : (a) sans mise en forme, (b) intensité croissante, (c) intensité décroissante et (d) intensité croissante puis décroissante. Le train contient 100 impulsions séparées de 4 ps et $\alpha_\infty = 7.95$.

haute densité électronique à la fin du train, l'énergie finale du réseau n'est pas maximisée. La faible densité électronique et le faible chauffage qui en résulte durant les premières 300 ps n'est pas compensée par la rapide augmentation de la densité sur les 100 dernières ps. Pour une intensité décroissante (c), la densité électronique initiale est la plus importante, de même que celle des STE. La densité électronique augmente très légèrement durant les 100 premières ps avant de diminuer lentement, la transmission ayant le comportement opposée. La forte densité électronique créée par les premières impulsions relaxe vers les STE dont le temps de relaxation est plus long. Leur densité augmente jusqu'à ce que la relaxation des STE soit plus importante que celle des électrons de conduction (vers 300 ps). Par la suite, la densité de STE diminue. Pour une intensité croissante puis décroissante (d), la faible densité électronique initiale croît rapidement pendant 200 ps, puis décroît rapidement sur les 200 ps restantes. La production des STE est donc lente sur les premières 200 ps avant d'accélérer par la suite. Tout comme pour une intensité croissante (b), l'accélération de la production de STE ne parvient pas à compenser leur lente formation lors des premières impulsions, et la température finale du réseau reste inférieure au cas d'une intensité décroissante.

D'autres types de mise en forme du train d'impulsion ont été étudiées et peuvent être mentionnées succinctement. En ajoutant une impulsion de 12 TW/cm^2 afin de préparer le matériau, l'énergie absorbée est augmentée dans tous les cas considérés, sans changer les tendances que l'on vient de décrire. D'autre part, en divisant un train de 100 impulsions de 10 TW/cm^2 par impulsion en deux trains de 50 impulsions avec 12 TW/cm^2 par impulsion pour le premier et 8 TW/cm^2 pour le second, la densité d'énergie absorbée est sensiblement augmentée (2650 J/cm^3), au détriment cependant de la géométrie et la localisation du dépôt).

La figure 3.20 présente l'évolution du rapport d'aspect du dépôt en fonction du nombre

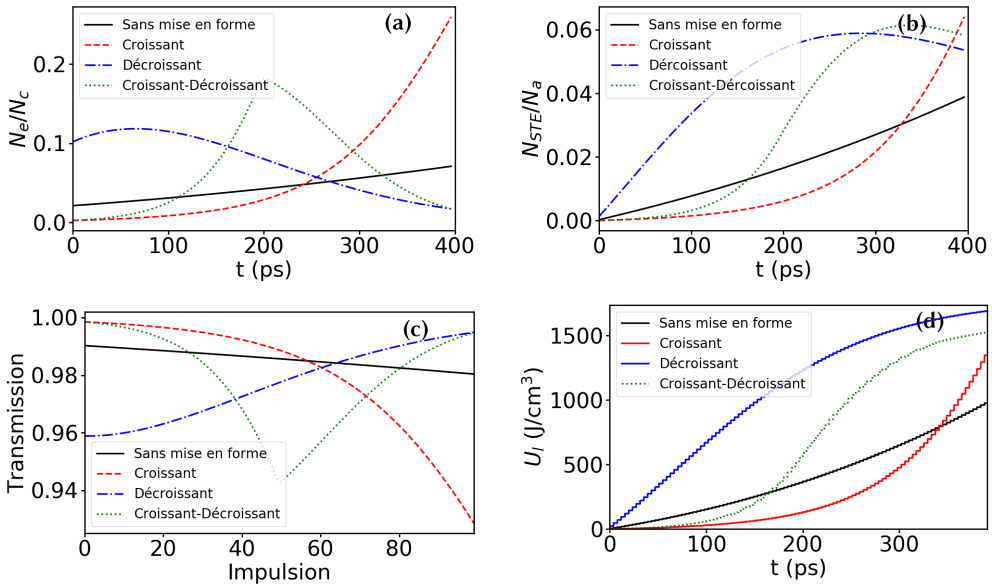

FIGURE 3.19 – Évolution de (a) la densité électronique maximale, (b) la densité maximale de STE, (c) la transmission et (d) la densité d'énergie absorbée par le réseau en fonction du temps pour différentes mises en forme du train d'impulsions. Le train contient 100 impulsions séparées de 4 ps avec $\alpha_\infty = 7.95$.

d'impulsions pour les différentes mises en forme pour $\alpha_\infty = 7.95$. Le rapport d'aspect attendu est autour de 1. Les évolutions des rapports d'aspect suivent des évolution analogues et opposées à la densité d'énergie absorbée par le réseau (Fig. 3.19.(d)).

Sans mise en forme du train, le rapport d'aspect initial est très proche de 1, et diminue de manière quasi-linéaire impulsion après impulsion jusqu'à atteindre 0.97. L'intensité étant plus faible dans ce cas, le rapport d'aspect initial est mieux conservé. Pour les trains d'intensités croissante et croissante puis décroissante, le rapport d'aspect initial est de 1.01, et diminue jusqu'à 0.90. Pour une intensité décroissante, le rapport d'aspect évolue de 0.93 à 0.90. On note que le rapport d'aspect final semble dépendre uniquement de l'intensité maximale du train indépendemment de sa mise en forme.

Pour conclure, la mise en forme du train d'impulsion est un élément essentiel en vue d'augmenter l'énergie déposée dans le matériau. Pour une énergie donnée du train d'impulsions laser, un gain de 60% pour la densité maximale d'énergie absorbée par le réseau est obtenu en utilisant un train d'intensité décroissante de 12 à 8 TW/cm^2 par rapport à un train non mis en forme d'impulsions de 10 TW/cm^2. L'utilisation d'une ou plusieurs impulsions de plus haute intensité au début du train permet de générer des STE au sein du matériau, et ainsi favoriser la création d'électrons de conduction et le chauffage du réseau lors des impulsions suivantes. En vu d'obtenir un dépôt d'énergie localisé proche du plan focal et d'en contrôler la géométrie, les résultats des simulations suggèrent qu'une mise en forme idéale du train doit permettre de maintenir une densité électronique relativement constante après chaque impulsion. Cette densité doit être suffisante pour induire un chauffage significatif, et

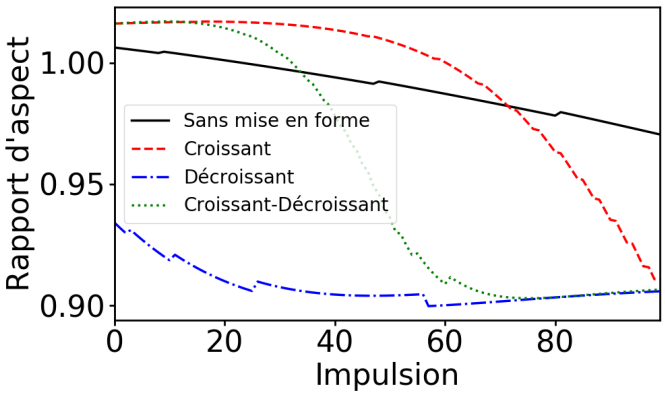

FIGURE 3.20 – Évolution du rapport d'aspect en fonction du nombre d'impulsions pour différentes mises en forme du train. Le taux de dérive spatiale en fréquence correspond à $\alpha_\infty = 7.95$.

suffisamment modérée pour ne pas altérer la précision du dépôt (en conditions paraxiales).

3.5 Synthèse

Dans ce chapitre, on a développé un modèle de propagation permettant de décrire la propagation d'un train d'impulsions laser dans un matériau diélectrique. Ce modèle est adapté pour l'étude de la structuration de matériaux diélectriques par des impulsions à dérive spatiale en fréquence, et pour des conditions laser modérées (intensité et focalisation). En tirant parti de ce régime laser particulier, le modèle a été optimisé en permettant ainsi de réaliser des simulations en quelques minutes par impulsion, et ainsi pouvoir considérer un grand nombre d'impulsions laser.

Le modèle développé a été comparé à des résultats expérimentaux publiés dans la littérature, portant sur l'influence des défauts permanents, et étudiant l'évolution de la transmission en fonction du nombre d'impulsions dans un échantillon de silice. Les simulations présentent un bon accord avec ces expériences, accord pouvant être amélioré en ajustant les taux de photoionisation des électrons de valence et des défauts permanents. Cette étude a permis de conforter la capacité du modèle à prédire les comportements observés en régime multi-impulsionnel de manière qualitative.

Nous avons finalement utilisé le modèle afin d'étudier l'influence sur le dépôt d'énergie du taux de répétition, de l'intensité laser, du taux de dérive spatial en fréquence et de la distribution en intensité au sein du train d'impulsions laser dans une cible de silice. Nos résultats montrent que les hautes cadences de répétition favorisent le développement de défauts transitoires dans le cas où la durée totale du train est inférieure à leur temps de relaxation. L'énergie déposée dans le matériau est alors augmentée, les défauts transitoires permettant d'augmenter la densité d'électrons portés en bande de conduction. En utilisant des impulsions avec une dérive spatiale en fréquence et des intensités laser modérées, nous avons montré la

possibilité de contrôler simultanément la géométrie et la position du dépôt d'énergie. Finalement, la mise en forme de la distribution de l'intensité au sein du train d'impulsions nous a permis d'augmenter l'énergie déposée dans le matériau, notamment en préparant le matériau avec des impulsions d'intensité plus élevée.

Références

[1] I. Iosilevskiy, V. Gryaznov et A. Solovev. “Properties of high-temperature phase diagram and critical point parameters in silica”. In : *High Temperatures - High Pressures* 43.2-3 (2014), p. 227-241.

[2] Vladimir P. Zhukov, Selcuk Akturk et Nadezhda M. Bulgakova. “Asymmetric interactions induced by spatio-temporal couplings of femtosecond laser pulses in transparent media”. In : *JOSA B* 36.6 (juin 2019), p. 1556-1564.

[3] O. Dematteo Caulier, K. Mishchik, B. Chimier, S. Skupin, A. Bourgeade, C. Javaux Léger, R. Kling, C. Hönninger, J. Lopez, V. Tikhonchuk et G. Duchateau. “Femtosecond laser pulse train interaction with dielectric materials”. In : *Applied Physics Letters* 107 (nov. 2015), p. 181110.

[4] Caterina Gaudiuso, Giuseppe Giannuzzi, Annalisa Volpe, Pietro Mario Lugarà, Isabelle Choquet et Antonio Ancona. “Incubation during laser ablation with bursts of femtosecond pulses with picosecond delays”. In : *Optics Express* 26.4 (fév. 2018), p. 3801-3813.

[5] P. P. Rajeev, M. Gertsvolf, E. Simova, C. Hnatovsky, R. S. Taylor, V. R. Bhardwaj, D. M. Rayner et P. B. Corkum. “Memory in Nonlinear Ionization of Transparent Solids”. In : *Physical Review Letters* 97.25 (déc. 2006), p. 253001.

[6] Ziyue Guo, Kailin Hu, Tao Cao, Shaozhen Liu, Jikun Yan, Zhou Li, Qi Xu, Paul B. Corkum et Jiahui Peng. “Energy deposition and incubation effects of nonlinear absorption of ultrashort laser pulses in dielectrics”. EN. In : *Optics Express* 30.7 (mars 2022), p. 10317-10328. issn : 1094-4087. (Visité le 20/05/2022).

[7] L. Bergé, S. Skupin, R. Nuter, J. Kasparian et J.-P. Wolf. “Ultrashort filaments of light in weakly ionized, optically transparent media”. In : *Reports on Progress in Physics* 70.10 (2007), p. 1633.

[8] L. Sudrie, A. Couairon, M. Franco, B. Lamouroux, B. Prade, S. Tzortzakis et A. Mysyrowicz. “Femtosecond Laser-Induced Damage and Filamentary Propagation in Fused Silica”. In : *Physical Review Letters* 89.18 (oct. 2002), p. 186601.

[9] R. W. Boyd. *Nonlinear Optics, Third Edition*. USA : Academic Press, Inc., 2008.

[10] Rüdiger Paschotta. *Encyclopedia of Laser Physics and Technology*. Anglais. Wiley-VCH Verlag GmbH, 2008.

[11] Alexander Q. Wu, Ihtesham H. Chowdhury et Xianfan Xu. “Femtosecond laser absorption in fused silica : Numerical and experimental investigation”. In : *Physical Review B* 72.8 (août 2005), p. 085128.

[12] A. Couairon, E. Brambilla, T. Corti, D. Majus, O. de J. Ramírez-Góngora et M. Kolesik. “Practitioner’s guide to laser pulse propagation models and simulation”. In : *The European Physical Journal Special Topics* 199.1 (nov. 2011), p. 5-76.

[13] D. Grojo, M. Gertsvolf, S. Lei, T. Barillot, D. M. Rayner et P. B. Corkum. “Exciton-seeded multiphoton ionization in bulk SiO2”. In : *Physical Review B* 81.21 (juin 2010), p. 212301.

[14] Konstantin Mishchik. "Ultrafast laser-induced modification of optical glasses : a spectroscopy insight into the microscopic mechanisms". Thèse de doct. Université Jean Monnet - Saint-Etienne, juill. 2012.

[15] Han Wang et Hong Shen. "A Prediction Model for Ablation Fluence Threshold in Femtosecond Laser Processing of Fused Silica". In : *Journal of Micro and Nano-Manufacturing* 5.031006 (juin 2017).

[16] B. Chimier, O. Utéza, N. Sanner, M. Sentis, T. Itina, P. Lassonde, F. Légaré, F. Vidal et J. C. Kieffer. "Damage and ablation thresholds of fused-silica in femtosecond regime". In : *Physical Review B* 84.9 (sept. 2011), p. 094104.

[17] N. M. Bulgakova, Razvan Stoian et A. Rosenfeld. "Laser-induced modification of transparent crystals and glasses". In : *Quantum Electronics* 40.11 (2010), p. 966.

[18] S. Guizard, P. Martin, G. Petite, P. D'Oliveira et P. Meynadier. "Time-resolved study of laser-induced colour centres in SiO2". In : *Journal of Physics : Condensed Matter* 8.9 (fév. 1996), p. 1281-1290.

[19] Allan Bildé. "Etude des mécanismes fondamentaux d'interaction entre impulsions laser ultra-brèves et matériaux diélectriques". Thèse de doct. Université Paris-Saclay, juin 2018.

[20] Dirk Wortmann, Mark Ramme et Jens Gottmann. "Refractive index modification using fs-laser double pulses". In : *Optics Express* 15.16 (août 2007), p. 10149-10153.

[21] Sören Richter, Fei Jia, Matthias Heinrich, Sven Döring, Ulf Peschel, Andreas Tünnermann et Stefan Nolte. "The role of self-trapped excitons and defects in the formation of nanogratings in fused silica". In : *Optics Letters* 37.4 (fév. 2012), p. 482-484.

[22] Isamu Miyamoto, Kristian Cvecek et Michael Schmidt. "Evaluation of nonlinear absorptivity in internal modification of bulk glass by ultrashort laser pulses". In : *Optics Express* 19.11 (mai 2011), p. 10714-10727. issn : 1094-4087.

[23] Balys Momgaudis, Viaceslav Kudriasov, Mikas Vengris et Andrius Melninkaitis. "Quantitative assessment of nonlinearly absorbed energy in fused silica via time-resolved digital holography". In : *Optics Express* 27.5 (mars 2019), p. 7699-7711.

Conclusion et perspectives

Ce travail de thèse a eu pour objectif d'étudier la structuration en volume d'un matériau diélectrique par un train d'impulsions laser femtoseconde avec dérive spatiale en fréquence. L'objectif était de trouver un moyen efficace de déposer une quantité significative d'énergie tout en contrôlant la géométrie et la localisation du dépôt d'énergie. La méthode utilisée repose sur la mise en forme des impulsions par leur focalisation spatio-temporelle, et également celle du train d'impulsions. Ces deux aspects furent motivés par leur potentiel pour contrôler l'énergie déposée dans le volume du matériau, et également par le manque d'études théoriques existant dans la littérature, en raison du coût numérique important qu'elle représenteraient. Un modèle de propagation efficace a donc été développé pour palier ce manquement, et ainsi permettre des études portant sur un grand nombre d'impulsions et de paramètres.

Dans le premier chapitre, les différents processus physiques intervenant lors de la propagation d'une impulsion laser dans un matériau diélectrique ont été exposés. La dynamique électronique sous champ laser a d'abord été décrite. En partant du processus de photoionisation induit par le laser, le chauffage des électrons et l'ionisation par impact qui en découle ont été successivement présentés. La dynamique de formation des défauts transitoires et permanents, responsables d'un effet d'incubation lors de l'irradiation par des trains d'impulsions, a également été discutée. La modélisation du transfert d'énergie des électrons vers le réseau a enfin été réalisée à partir d'un modèle à deux températures. Les propriétés optiques des matériaux diélectriques ont été abordées à partir des modèles de Drude, portant sur les électrons de conduction, et Drude-Lorentz, tenant également compte des électrons de valence et des défauts. Il en est ressorti que le modèle de Drude permettait une description satisfaisante des propriétés optiques du milieu. L'influence de la température et de la densité du réseau sur l'indice optique ont été brièvement présentés, montrant que leur influence peut être significative lors de l'irradiation du matériau par des trains d'impulsions. Puis, la propagation laser a été décrite dans les cas linéaire (dans le vide) et non-linéaire (dans le matériau). En partant des équations de Maxwell, l'origine des effets non-linéaires a été mise en évidence. L'équation de Schrödinger non-linéaire a également été présentée, et a permis de distinguer le rôle des différents processus lors de la propagation. La propagation linéaire du champ laser et la notion de couplage spatio-temporel ont été abordées, notamment à travers le formalisme de l'optique matricielle. En dernier lieu, on a détaillé la notion de mise en forme des impulsions via la focalisation spatio-temporelle, et les différents régimes d'accumulation lors

de l'interaction avec des trains d'impulsions.

Le deuxième chapitre était consacré à l'étude originale de l'interaction d'une impulsion avec dérive spatiale en fréquence avec la silice, c'est-à-dire la focalisation spatio-temporelle d'une impulsion laser dans un matériau diélectrique. Une configuration d'intérêt a d'abord été établie en s'appuyant sur les données de la littérature, et le dispositif laser permettant d'aboutir à une telle configuration a été modélisé grâce au formalisme de l'optique matricielle. Les caractéristiques d'une impulsion à dérive spatiale en fréquence ont ensuite été détaillées. L'expression de l'évolution de la durée de l'impulsion à notamment été confrontée a un résultat expérimental. Ces travaux ont permis de mieux comprendre la propagation linéaire d'impulsions spatialement et temporellement focalisées. La configuration laser obtenue a été injectée dans le code ARCTIC afin de simuler l'interaction de l'impulsion avec la silice en 3D. Les résultats ont montré la possibilité de contrôler la direction du front d'ionisation via la dérive spatiale en fréquence (ici équivalente au pulse-front tilt dans le plan focal). Une forte valeur du pulse-front tilt favorise un front d'ionisation transverse à la direction de propagation, là où ce front d'ionisation est longitudinal et orienté vers la source laser pour les impulsions gaussiennes. Pour des intensités de l'ordre de 20 TW/cm^2, cette propriété permet ainsi de contrôler la forme du dépôt d'énergie, qui a également été évaluée par un modèle théorique simple. On doit finalement noter que dans les conditions utilisées ici, la focalisation spatio-temporelle ne permet cependant pas d'améliorer la localisation du dépôt autour du plan focal. Les dépôts d'énergie obtenus dans ce chapitre pour une unique impulsion ne permettant pas la structuration du matériau, un modèle de propagation en régime multi-impulsionnel a été développé et utilisé dans le chapitre suivant.

Le troisième et dernier chapitre était consacré à l'interaction d'un train d'impulsions avec la silice, régime permettant de limiter la densité électronique et donc la perturbation de la propagation. La focalisation spatio-temporelle a également été utilisée dans l'optique du contrôle de la géométrie. Un modèle de propagation spécifique reposant sur l'équation de Schrödinger non-linéaire a été développé en tirant parti des conditions laser modérées considérées dans ce travail, autour de 10 TW/cm^2 dans ce chapitre. Le modèle permet ainsi d'approcher des résultats 3D avec un modèle 2D sans utiliser la géométrie axi-symétrique, interdite par la présence d'une dérive spatiale en fréquence. Le modèle a été confronté au code ARCTIC et permet de retrouver les tendances et les ordres de grandeurs concernant le dépôt de l'énergie laser avec un temps de calcul d'une vingtaine de minutes, contre quelques centaines d'heures pour ARCTIC. Un modèle de formation des défauts transitoires et permanents a été introduit afin de prendre en compte un effet d'incubation dans le matériau et de tester la méthode en conditions réalistes. En ajustant raisonnablement les paramètres, ce modèle d'incubation a pu rendre compte de tendances observées expérimentalement dans des expériences en régime multi-impulsionnel. Le modèle développé a ensuite été utilisé dans des simulations portant sur l'interaction de quelques dizaines à quelques centaines d'impulsions dans la silice, avec de forte cadences de répétition laser (>GHz). Il en ressort (1) qu'un court délai entre deux impulsions successives favorise l'effet d'incubation et l'absorption de l'énergie en tirant parti

de la non-relaxation des défauts transitoires, (2) que l'intensité doit être assez faible pour favoriser la précision du dépôt, mais suffisante pour obtenir un dépôt significatif, et (3) que la mise en forme du train d'impulsions permet une forte augmentation du dépôt d'énergie, notamment en préparant le matériau avec une première impulsion d'intensité relativement élevée.

Plusieurs perspectives sont ouvertes suite à ce travail. Concernant le cas d'une unique impulsion, ce travail s'est orienté essentiellement sur l'influence de l'intensité laser et du taux de dérive spatiale en fréquence. Il semble nécessaire de croiser ces études avec celles sur la durée de l'impulsion et son ouverture numérique. En particulier, il serait intéressant d'étudier des impulsions de plus courtes durées pour lesquelles des couplages spatio-temporels d'ordre supérieurs apparaissent. De plus, les discussions du Chapitre 2 concernant le rapport d'aspect ont été faites en deux dimensions, le PFT étendant la dimension du dépôt dans une seule direction transverse. Pour obtenir un dépôt entièrement symétrique en trois dimensions, un faisceau elliptique dans le plan focal pourrait être utilisé. Il serait également possible d'employer une dérive spatiale en fréquence radiale. Dans le cas de trains d'impulsions, il serait pertinent d'étendre le modèle d'incubation à d'autres effets mémoires, comme la température et la densité. Il serait possible de tenir compte de la diffusion thermique pour considérer des cadences de répétition plus faibles. La translation du matériau au cours de l'irradiation pourrait être implémentée, par exemple afin d'étudier le phénomène d'inscription non-réciproque encore peu documentée du point de vue théorique. Ce modèle gagnerait également à être lui-même implémenté dans un code hydrodynamique ou thermo-élasto-plastique pour se pencher sur l'effet de l'état thermodynamique du matériau sur la propagation laser, et prédire les caractéristiques des structures induites lorsque des mouvement de la matière ont lieu. Un passage du modèle à une géométrie 2D axi-symétrique ou 3D serait alors pertinent. Enfin, d'autres matériaux pourraient être étudiés, d'autres mises en forme du train et d'autres types d'impulsions pourraient être considérées, par exemple des faisceaux de Bessel.

Annexe A

Fonctions spéciales

Intégrale elliptique

Les intégrales elliptiques complètes de première et seconde espèce s'écrivent respectivement [1] :

$$K_1(x) = \int_0^{\pi/2} \frac{1}{\sqrt{1 - k^2 \sin\theta}} d\theta, \tag{A.1}$$

$$K_2(x) = \int_0^{\pi/2} \sqrt{1 - k^2 \sin\theta} d\theta. \tag{A.2}$$

Intégrale de Dawson

L'intégrale de Dawson s'écrit

$$\phi(x) = \int_0^{x} \exp(t^2 - x^2). \tag{A.3}$$

Annexe B

Transformées de Fourier

On définit la transformée de Fourier directe ainsi que sa transformée inverse, respectivement :

$$\mathcal{F}[E(\mu)] = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} E(\nu) \exp(-i\mu\nu) d\nu, \tag{B.1}$$

$$\mathcal{F}[E(\nu)] = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} E(\mu) \exp(+i\mu\nu) d\mu. \tag{B.2}$$

On utilisera la relation suivante pour les calculs des transformées de Fourier [1] :

$$\int_{-\infty}^{\infty} \exp\left(-px^2 \pm qx\right) dx = \sqrt{\frac{\pi}{p}} \exp\left(\frac{q^2}{4p}\right). \tag{B.3}$$

Annexe C

Dérivation de l'Equation de Schrödinger non-linéaire

On présente ici la dérivation d'une version courante dans la littérature de l'Equation de Schrödinger non-linéaire. En partant des équations de Maxwell dans la matière pour les champs électrique $\vec{E}(\vec{r},t)$ et magnétique $\vec{B}(\vec{r},t)$:

$$\vec{\nabla}\cdot\vec{D}=\rho_e, \tag{C.1}$$
$$\vec{\nabla}\wedge\vec{E}=-\partial_t\vec{B}, \tag{C.2}$$
$$\vec{\nabla}\cdot\vec{B}=0, \tag{C.3}$$
$$\vec{\nabla}\wedge\vec{B}=\mu_0(\partial_t\vec{D}+\vec{J}), \tag{C.4}$$

avec $\rho_e(\vec{r},t)$ la densité volumique de charges libres, $\vec{D}=\epsilon_0\vec{E}+\vec{P}$ le déplacement, $\vec{P}$ la polarisation et $\vec{B}=\mu_0\vec{H}$, $\vec{J}$ la densité de courant totale, on établit l'équation de propagation du champ électrique :

$$\nabla^2\vec{E}-\vec{\nabla}(\vec{\nabla}\cdot\vec{E})-c^{-2}\partial_t^2\vec{E}=\mu_0(\partial_t^2\vec{P}+\partial_t\vec{J}). \tag{C.5}$$

On a également :

$$\vec{\nabla}\cdot\vec{E}=\epsilon_0^{-1}(\rho_e-\vec{\nabla}\cdot\vec{P}). \tag{C.6}$$

En décomposant la polarisation en une partie linéaire $\vec{P}^{(1)}$ et une partie non-linéaire $\vec{P}_{NL}$, et en utilisant les relations $\vec{P}^{(1)}=\epsilon_0\chi^{(1)}(\omega)\vec{E}$ et $\epsilon(\omega)=1+\chi^{(1)}(\omega)$, l'équation (C.5) devient :

$$\nabla^2\vec{E}-\epsilon(\omega)c^{-2}\partial_t^2\vec{E}=\mu_0(\partial_t^2\vec{P}_{NL}+\partial_t\vec{J})+\vec{\nabla}(\vec{\nabla}\cdot\vec{E}). \tag{C.7}$$

On peut exprimer cette équation pour les champs $\widehat{\vec{E}}(\vec{r},\omega)$ et $\widehat{\vec{B}}(\vec{r},\omega)$ par transformée de Fourier :

$$[\partial_x^2+\nabla_\perp^2+k^2(\omega)]\widehat{\vec{E}}=-\mu_0\omega^2(\widehat{\vec{P}}_{NL}+i\widehat{\vec{J}}/\omega)+\vec{\nabla}(\vec{\nabla}\cdot\vec{E}), \tag{C.8}$$

avec $\partial_\perp^2 = \partial_y^2 + \partial_z^2$, $k(\omega)^2 = \epsilon(\omega)\omega^2/c^2$ et où l'on a utilisé $\partial_t \leftrightarrow -i\omega$. On peut également réécrire l'équation (C.6) sous la forme :

$$\vec{\nabla} \cdot \widehat{\vec{E}} = \epsilon_0^{-1}\epsilon^{-1}(\omega)(\widehat{\rho}_e - \vec{\nabla} \cdot \widehat{\vec{P}}_{NL}). \tag{C.9}$$

En utilisant la relation de conservation de la charge $\partial_t N_e + \vec{\nabla} \cdot \vec{J} = 0$ on obtient $\widehat{N}_e = -\vec{\nabla} \cdot (i\widehat{\vec{J}}/\omega)$ et donc :

$$[\partial_z^2 + \nabla_\perp^2 + k^2(\omega)]\widehat{\vec{E}} = -\mu_0\omega^2(\widehat{\vec{P}}_{NL} + i\widehat{\vec{J}}/\omega) - \epsilon_0^{-1}\epsilon^{-1}\vec{\nabla}[\vec{\nabla} \cdot (\widehat{\vec{P}}_{NL} + i\widehat{\vec{J}}/\omega)], \tag{C.10}$$

ou encore

$$[\partial_z^2 + \nabla_\perp^2 + k^2(\omega)]\widehat{\vec{E}} = -\omega^2\epsilon_0^{-1}c^{-2}\left[(\widehat{\vec{P}}_{NL} + i\widehat{\vec{J}}/\omega) + k(\omega)^{-2}\vec{\nabla}[\vec{\nabla} \cdot (\widehat{\vec{P}}_{NL} + i\widehat{\vec{J}}/\omega)]\right]. \tag{C.11}$$

On fait maintenant deux hypothèses : (1) les variations des champs $\vec{P}_{NL}$ et $\vec{J}$ dans la direction de propagation z sont faibles sur une distance de l'ordre de $k^{-1}(\omega)$, soit $|k^{-1}(\omega)\partial_z \vec{P_{NL}}| \ll |\vec{P_{NL}}|$ et $|k^{-1}(\omega)\partial_z \vec{J}| \ll |\vec{J}|$ (on néglige la variation spatiale des effets non-linéaires sur des distances de l'ordre de la longueur d'onde) et (2) l'extension transverse du faisceau est faible devant la longueur d'onde $k_\perp^2 \ll k^2(\omega)$. Cela permet de négliger le dernier terme du côté droit de l'équation (C.11), ce qui peut être vérifié en réalisant sa transformée de Fourier spatiale dans le domaine $k_\perp$. On peut alors réduire cette équation à une équation scalaire :

$$[\partial_z^2 + \nabla_\perp^2 + k^2(\omega)]\widehat{E} = -\omega^2\epsilon_0^{-1}c^{-2}(\widehat{P}_{NL} + i\widehat{J}/\omega). \tag{C.12}$$

On choisit le champ électrique sous la forme $E(\vec{r},t) = E_0(\vec{r},t)e^{-i(\omega_0 t - k_0 z)}$, où $E_0(\vec{r},t)$ est l'enveloppe lentement variable du champ. On définit également sa transformée de Fourier :

$$\widehat{E}(\vec{r},\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} E_0(\vec{r},t)e^{-i(\omega_0 t - k_0 z)}e^{i\omega t}dt. \tag{C.13}$$

On a donc $\widehat{E}(\vec{r},\omega) = \widehat{E}_0(\vec{r},\omega-\omega_0)e^{i\omega t}$, d'où : l'équation (C.12) :

$$[\partial_z^2 + \nabla_\perp^2 + 2ik_0\partial_z + (k^2(\omega) - k_0^2)]\widehat{E}_0(\vec{r},\omega-\omega_0) = -\omega^2\epsilon_0^{-1}c^{-2}(\widehat{P}_{NL}(\vec{r},\omega) + i\widehat{J}(\vec{r},\omega)/\omega)e^{-ik_0 z} \tag{C.14}$$

On développe le nombre d'onde $k(\omega)$ sous la forme d'une série de Taylor, $k(\omega) = k_0 + k_1(\omega - \omega_0) + \widehat{G}$ avec :

$$\widehat{G} = \sum_{n=2}^{\infty} \frac{1}{n!}k_n(\omega-\omega_0)^n, \tag{C.15}$$

et on définit l'opérateur G :

$$G = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} \widehat{G}e^{-i(\omega-\omega_0)t}d\omega = \sum_{n=2}^{\infty} \frac{1}{n!}k_n(i\partial_t)^n. \tag{C.16}$$

Avec $k_0 = \omega_0 n_0/c$ et on identifie $k_1 = \partial k/\partial\omega|_{\omega=\omega_0} = 1/c$ et $k_n = \partial^n k/\partial\omega^n|_{\omega=\omega_0}$. On a donc $k(\omega)^2 = k_0^2 + 2k_0k_1(\omega-\omega_0) + 2k_0\widehat{G} + k_1^2(\omega-\omega_0)^2 + 2k_1\widehat{D}(\omega-\omega_0) + \widehat{G}^2$. En négligeant le terme en $\widehat{G}^2$:

$$\begin{aligned}&[\partial_z^2 + \nabla_\perp^2 + 2ik_0\partial_z + 2k_0k_1(\omega-\omega_0) + 2k_0\widehat{G} + k_1^2(\omega-\omega_0)^2 + 2k_1\widehat{G}(\omega-\omega_0)]\widehat{E}_0(\vec{r},\omega-\omega_0)\\ &= -\omega^2\epsilon_0^{-1}c^{-2}(\widehat{P}_{NL}(\vec{r},\omega) + i\widehat{J}(\vec{r},\omega)/\omega)e^{-ik_0z}\end{aligned} \tag{C.17}$$

On réalise la transformée de Fourier inverse ($\omega \to i\partial_t$) de cette équation en multipliant par $e^{-i(\omega-\omega_0)t}$ et en intégrant sur toutes les fréquences :

$$\begin{aligned}&[\partial_z^2 + \nabla_\perp^2 + 2ik_0\partial_z + 2ik_0c^{-1}\partial_t + 2k_0G - c^{-2}\partial_t^2 + 2ic^{-1}G\partial_t]E_0(\vec{r},t)\\ &= \epsilon_0^{-1}c^{-2}(\partial_t^2 P_{NL}(\vec{r},t) + \partial_t J(\vec{r},t))e^{-i(k_0z-\omega_0t)}\end{aligned} \tag{C.18}$$

On représente maintenant par leur enveloppe lentement variables la polarisation non-linéaire : $P_{NL}(\vec{r},t) = P_{NL,0}(\vec{r},t)e^{-i(\omega_0t-k_0z)}$ et la densité de courant $J(\vec{r},t) = J_0(\vec{r},t)e^{-i(\omega_0t-k_0z)}$. On détermine alors :

$$\partial_t P_{NL}(\vec{r},t) = (-i\omega_0 P_{NL,0} + \partial_t P_{NL,0})e^{-i(\omega_0t-k_0z)}, \tag{C.19}$$

$$\partial_t^2 P_{NL}(\vec{r},t) = -\omega_0^2\left[(1+i\omega_0^{-1}\partial_t)^2 P_{NL,0}\right]e^{-i(\omega_0t-k_0z)}. \tag{C.20}$$

et :

$$\partial_t J(\vec{r},t) = (-i\omega_0 J_0 + \partial_t J_0)e^{-i(\omega_0t-k_0z)} \tag{C.21}$$

On a alors :

$$\begin{aligned}&[\partial_z^2 + \nabla_\perp^2 + 2ik_0(\partial_z + c^{-1}\partial_t) + 2(k_0 + ic^{-1}\partial_t)D - c^{-2}\partial_t^2]E_0(\vec{r},t)\\ &= -\epsilon_0^{-1}c^{-2}\left[\omega_0^2(1+i\omega_0^{-1}\partial_t)^2 P_{NL,0} + i\omega_0 J_0 - \partial_t J_0\right]\end{aligned} \tag{C.22}$$

On réalise maintenant le changement de variable $z' = z$ et $t' = t - z/c$ (repère de l'impulsion) donc $\partial_z = \partial_{z'} - c^{-1}\partial_{t'}$ et $\partial_t = \partial_{t'}$. L'équation précédente devient :

$$\begin{aligned}&[\partial_{z'}^2 - 2c^{-1}\partial_{z'}\partial_{t'} + \nabla_\perp^2 + 2ik_0\partial_{z'} + 2k_0D + ic^{-1}\partial_{t'}D]E_0(\vec{r},t)\\ &= -\epsilon_0^{-1}c^{-2}\left[\omega_0^2(1+i\omega_0^{-1}\partial_{t'})^2 P_{NL,0} + i\omega_0 J_0 - \partial_{t'}J_0\right]\end{aligned} \tag{C.23}$$

On suppose l'enveloppe du champ lentement variable $\partial_{z'}^2 E_0 \ll k_0\partial_{z'}E_0$:

$$\begin{aligned}&[\nabla_\perp^2 + 2ik_0\partial_{z'}(1+i\omega_0^{-1}\partial_{t'}) + 2k_0D(1+i\omega_0^{-1}\partial_{t'})]E_0(\vec{r},t)\\ &= -\epsilon_0^{-1}c^{-2}(\omega_0^2(1+i\omega_0^{-1}\partial_{t'})^2 P_{NL,0} + i\omega_0(1+i\omega_0^{-1}\partial_{t'})J_0)\end{aligned} \tag{C.24}$$

On peut approximer l'opérateur $1 + i\omega_0^{-1}\partial_{t'}$ par l'unité (les variations d'enveloppes sont faibles sur des durées de l'ordre de ω_0^{-1}) et l'opérateur D à sa valeur au second ordre $D \simeq -1/2k_2\partial_{t'}^2$. On considère un milieu où l'effet Kerr est important $P_{NL,0} = 3\epsilon_0\chi^{(3)}E_0^3$ avec

$\chi^{(3)} = 2n_0 n_2 I/3E_0^2$ et on utilise la loi d'Ohm locale $J_0 = \sigma E_0$:

$$\frac{\partial E_0(\vec{r},t)}{\partial z'} = \left[\frac{i}{2k_0}\nabla_\perp^2 - \frac{i}{2}k_2\frac{\partial^2}{\partial t'^2} + i\frac{\omega_0 n_2}{c}I - \frac{\omega_0}{2k_0\epsilon_0 c^2}\sigma E\right] E_0(\vec{r},t) \tag{C.25}$$

On peut décrire les mouvements électroniques par un modèle fluide :

$$\partial_t N_e + \vec{\nabla}\cdot(N_e\vec{v}_e) = S, \tag{C.26}$$

$$\partial_t \vec{v}_e + (\vec{v}_e\cdot\vec{\nabla})\vec{v}_e = -\frac{e}{m_e}(\vec{E} + \vec{v}_e \wedge \vec{B}) - \nu_e\vec{v}_e - S\vec{v}_e/N_e, \tag{C.27}$$

où S est le terme source. On peut négliger le terme $\vec{v}_e \wedge \vec{B}$ dans le régime non relativiste ($I \ll 10^{18} W/cm^2$) puisque $B \sim E/c$. En multipliant l'équation (C.27) par $-eN_e$, et en introduisant $\vec{J} = -eN_e\vec{v}_e$, la combinaison de ces deux équations donne :

$$\partial_t\vec{J} + (\vec{J}\cdot\vec{\nabla})\vec{v}_e = -\frac{e^2 N_e}{m_e}\vec{E} - \nu_e\vec{J} - (\vec{\nabla}\cdot\vec{J})\vec{v}_e \tag{C.28}$$

On peut négliger les termes du second ordre pour une intensité inférieure à $10^{15} W/\mathrm{cm}^2$ [2] (on peut linéariser les équations fluides par un traitement perturbatif). On en déduit :

$$(\partial_t + \nu_e)\vec{J} = \frac{e^2 N_e}{m_e}\vec{E}, \tag{C.29}$$

et par transformée de Fourier :

$$\widehat{\vec{J}} = \frac{e^2}{m_e(\nu_e^2 + \omega^2)}(\omega + i\nu_e)\widehat{N}_e\widehat{\vec{E}}. \tag{C.30}$$

On identifie la conductivité :

$$\sigma(\omega) = \frac{e^2}{m_e(\nu_e^2 + \omega^2)}(\omega^2 + i\nu_e^2)\widehat{N}_e, \tag{C.31}$$

souvent vue sous la forme

$$\sigma(\omega) = \sigma_0(\omega)\frac{1 + i\nu_e^2/\omega^2}{1 + \nu_e^2/\omega^2}, \tag{C.32}$$

avec $\sigma_0(\omega) = \widehat{N}_e(\omega)e^2/m_e\nu_e$ la conductivité statique, lorsque la fréquence laser est très grande devant la fréquence des collisions. On choisit d'approcher la valeur de la conductivité à sa valeur pour la fréquence centrale du laser $\omega = \omega_0$. Cette hypothèse est valide pour des impulsions lasers dont la fréquence est très grande devant la largeur spectrale. Avec $\lambda_0 = 800$ nm, $\omega_0 = 2.35$ fs^{-1}. La largeur spectrale d'une impulsion de durée τ_0 limitée par transformée de Fourier étant $0.44/\tau_0$, cette condition est satisfaite pour $\tau_0 \gg 0.2$ fs.

On a alors par transformée de Fourier inverse :

$$\sigma(\omega_0) = \frac{e^2}{m_e(\nu_e^2 + \omega_0^2)}(\omega_0 + i\nu_e)N_e. \tag{C.33}$$

En introduisant la section efficace de collisions $\sigma_{coll}(\omega) = \frac{e^2}{m_e\epsilon_0 n_0 c\nu_e(1+\omega^2/\nu_e^2)}$, et la densité critique $n_c = \omega_0^2 m_e\epsilon_0/e^2$ on vérifie :

$$\frac{\partial E_0(\vec{r},t)}{\partial z'} = \left[\frac{i}{2k_0}\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\frac{\partial}{\partial r}\right) - \frac{i}{2}k_2\frac{\partial^2}{\partial t'^2} + i\frac{\omega_0 n_2}{c}I - \frac{\sigma_{col}}{2}N_e - i\frac{k_0}{2n_0^2 N_e(1+\nu_e^2/\omega_0^2)}N_e\right]E_0(\vec{r},t), \tag{C.34}$$

où $\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\frac{\partial}{\partial r}\right) = \nabla_\perp^2$. Pour satisfaire la conservation de l'énergie, on doit tenir compte de l'absorption du champ laser pour la photoionisation. La densité d'énergie absorbée est :

$$\frac{dW}{dt} = \vec{J}_{PI}\cdot\vec{E} = \Delta_G\frac{\partial n_{e,PI}}{\partial t} = \Delta_G W_{PI}(n_{BV} - N_e). \tag{C.35}$$

On en déduit le courant d'ionisation

$$\vec{J}_{PI} = -\frac{\vec{E}\Delta_G W_{PI}}{|E|^2}(n_{BV} - N_e). \tag{C.36}$$

En tenant compte des pertes liées à la densité de courant d'ionisation :

$$\begin{aligned}\frac{\partial E_0(\vec{r},t)}{\partial z'} = \Bigg[&\frac{i}{2k_0}\frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\frac{\partial}{\partial r}\right) - \frac{i}{2}k_2\frac{\partial^2}{\partial t'^2} + i\frac{\omega_0 n_2}{c}I - \frac{\sigma_{coll}}{2}N_e \\ &-i\frac{k_0}{2n_0^2 N_e(1+\nu_e^2/\omega_0^2)}N_e - \frac{\Delta_G W_{PI}(n_{BV}-N_e)}{2I}\Bigg]E_0(\vec{r},t).\end{aligned} \tag{C.37}$$

Glossaire

Abréviations

— DP : défauts permanents

— NLSE : Non-Linear Schödinger Equation

— PFT : Pulse Front tilt

— SPC : Spatial Chirp

— SSTF : Simultaneous Spatial and Temporal Focusing

— STE : Self-Trapped Excitons

— TC : Temporal Chirp

Système de notations des grandeurs physiques

Grandeurs laser

— $\vec{B}$: champ magnétique

— $\vec{D}$: déplacement électrique

— $\vec{E}$: champ électrique

— I : intensité laser

— Q_{zt} : couplage spatio-temporel

— NA : ouverture numérique

— w : waist du faisceau

— τ : durée de l'impulsion

— α_∞ : étirement temporel de l'impulsion

— λ : longueur d'onde

— k : vecteur d'onde

— ω : pulsation

— ΔT : délai inter-impulsions

Grandeurs matériaux

— n_0 : indice de réfraction

— ϵ : permittivité diélectrique

— N_e : densité électronique en bande de conduction

— N_v : densité électronique en bande de valence

— N_{STE} : densité d'excitons auto-piégés

— N_d : densité de défauts permanents

— σ_n : section efficace d'ionisation généralisée

— τ_r : temps de relaxation électronique

— τ_{STE} : temps de relaxation des excitons auto-piégés

— T_e, T_l : températures des électrons et du réseau

— U_e, U_l : densités d'énergie des électrons et du réseau

— C_{ve}, C_{vl} : capacité calorifiques des électrons et du réseau

Constantes physiques

— c : vitesse de la lumière dans le vide

— $\hbar$: constante de Planck réduite

— k_B : constante de Boltzmann

— m_e : masse de l'électron

— ϵ_0 : permittivité diélectrique du vide, ou constante diélectrique

— μ_0 : perméabilité magnétique du vide, ou constante magnétique

Publications et contributions

Publications

R. Beuton, B. Chimier, P. Quinoman, P. González Alaiza de Martínez, R. Nuter, G. Duchateau, "Numerical studies of dielectric material modifications by a femtosecond Bessel–Gauss laser beam." Applied physics. A, Materials science & processing, Springer Verlag, 2021, 127 (5).

P. Quinoman, B. Chimier, G. Duchateau, "Theoretical modeling of dielectric material structuring using spatially chirped femtosecond laser pulse", Journal of the Optical Society of America B, Optical Society of America, 2022, 39, pp.166-176.

Posters

P. Quinoman, B. Chimier, G. Duchateau. "Modeling of dielectric material structuring using spatially chirped femtosecond laser pulse". Appolo Vilnius 2018.

P. Quinoman, B. Chimier, G. Duchateau. "Modeling of dielectric material structuring using spatially chirped femtosecond laser pulse". Journée de l'école doctorale SPI, Université de Bordeaux, 2020.

Présentations orales

P. Quinoman, B. Chimier, G. Duchateau. "Modeling of dielectric material structuring using spatially chirped femtosecond laser pulse". High Power Laser Ablation Symposium (HPLA) 2021 (distanciel).

P. Quinoman, B. Chimier, G. Duchateau. "Modeling of dielectric material structuring using train of spatially chirped femtosecond laser pulses". European Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO EUrope - EQEC) 2021 (distanciel).

Interventions de vulgarisation

Participation à la Nuit européenne des chercheur·es (poster), 2019.

Résumé : Les lasers femtosecondes sont aujourd'hui largement utilisés afin d'induire des modifications structurelles dans le volume des matériaux, en particulier dans les matériaux diélectriques. En raison de leur large bande interdite, ces matériaux sont transparents à la lumière visible, et ne deviennent absorbants que pour des flux importants. La non-linéarité de l'interaction entraîne ainsi l'existence d'un seuil en intensité pour ioniser sensiblement le matériau, permettant d'obtenir des dépôts d'énergie localisés au sein de son volume. Cependant, le contrôle de la position et de la géométrie de ce dépôt peut se révéler complexe, nécessitant d'ajuster finement les différents paramètres laser. Si l'influence de l'énergie laser, l'ouverture numérique du faisceau et la durée de l'impulsion ont été largement étudiées, la mise en forme de la distribution spatiale et temporelle de l'énergie laser constitue une approche prometteuse et moins documentée. Ce travail vise à étudier l'influence de la mise en forme de trains d'impulsions laser, dans des conditions de focalisation et d'intensité laser modérées (conditions paraxiales), pour des impulsions présentant une dérive spatiale en fréquence. Dans un premier temps, l'utilisation d'impulsions présentant une dérive spatiale en fréquence dans le plan transverse à la propagation est étudiée à l'aide du code ARCTIC, résolvant les équations de Maxwell en 3D. Des conditions laser pertinentes ont été identifiées et implémentées dans le code ARCTIC. Les simulations réalisées pour de telles impulsions démontrent la possibilité de contrôler la direction du front d'ionisation et ainsi la géométrie du dépôt d'énergie. Un modèle simple prédisant la géométrie du dépôt d'énergie est également présenté. Dans un second temps, afin d'étudier l'interaction de multiples impulsions avec le matériau, un modèle de propagation fondé sur l'équation de Schrödinger Non-Linéaire a été développé. Grâce à des optimisations analytiques, des résultats 3D sont correctement approchés avec un temps de calcul fortement réduit. La présence de défauts induits dans le matériau par les impulsions laser successives est introduite, mettant en exergue l'effet d'accumulation dans le matériau. Le modèle est comparé à des résultats expérimentaux. Des études paramétriques sont réalisées pour des trains jusqu'à une centaine d'impulsions. Il en ressort notamment que l'ajustement de l'intensité des impulsions au sein du train, du délai entre deux impulsions et du taux de dérive spatiale en fréquence permet d'augmenter l'énergie déposée et de contrôler la géométrie du dépôt.

Mots clés : Matériaux diélectriques, impulsions laser femtosecondes, train d'impulsions laser, mise en forme de faisceau

---

Abstract : Nowadays, femtosecond laser pulses are widely used to induce structural modifications within dielectric materials. Because of their large bandgap, those materials are transparents to visible light, and become absorbing for high intensities. This nonlinear feature of the interaction is responsible for a threshold intensity during the interaction, and allow one to induce localized energy deposition in the volume of the material. However, the control of both localization and geometry of the energy deposition requires a fine adjustment of the laser parameters. Currently, the influence of the laser energy and numerical aperture are well known. However, the spatio-temporal shaping of the laser energy distribution, through a spatial chirp in a direction transverse to the laser propagation, is a promising approach still to be investigated. The present work aims at studying the shaping of femtosecond laser pulse train, for intensity around the interaction threshold, and moderate focusing conditions. First, spatially chirped laser pulses are studied using the 3D Maxwell solver ARCTIC. Relevant laser configuration are identified and implemented in ARCTIC. The results demonstrate the possibility to control the direction of the ionization front and the shape of the energy deposition. A model has been developed to evaluate the geometry of the resulting structure. Then, in order to study multiple laser pulses interacting with a material, a propagation model based on NonLinear Schrödinger equation is developed. Using analytical optimization, 3D results are correctly predicted with very low computation cost. The influence of laser induced defects in the material is introduced as well as the incubation effect during multi-pulse irradiation. The model is validated against experimental results. Parametric studies are done for a train up to a hundred of laser pulses. It is shown that the energy deposition can be controlled by tuning the intensity distribution within the train.

Key words : Dielectric material, femtosecond laser pulses, train of laser pulses, beam shaping

---

Laboratoire d'accueil : Centre Lasers Intenses et Applications (C.E.L.I.A.), 43 rue Pierre Noailles, domaine du Haut Carré, 33400 TALENCE.