



Formation et auto-organisation de plasma induit par impulsions laser intenses dans un milieu diélectrique

Thèse

Jean-Luc Déziel

Doctorat en physique
Philosophiæ doctor (Ph. D.)

Québec, Canada

Résumé

Les interactions entre un milieu diélectrique et des impulsions laser intenses sont étudiées, d'abord d'un point de vue général, puis dans le contexte de la fabrication de nanostructures de surface auto-organisées. Les bases de l'électromagnétisme, de l'optique et de la physique des plasmas sont posées, avant de présenter la première contribution majeure de cette étude. Un nouveau modèle décrivant la formation de plasma induit par laser dans un milieu diélectrique, nommé *delayed rate equations* (DRE), est présenté. Ce modèle d'ionisation a les avantages d'être facile à implémenter dans une simulation numérique, peu coûteux en ressources computationnelles.

L'émergence de nanostructures périodiques auto-organisées à la surface initialement rugueuse et aléatoire de matériaux exposés à des impulsions laser est ensuite étudiée numériquement, en tenant compte des effets électromagnétiques (équations de Maxwell). La seconde contribution majeure est l'implémentation d'une boucle de rétroaction dans les simulations, entre le champ électromagnétique et le plasma en formation. Ces simulations révèlent un nouveau phénomène, l'auto-reconfiguration de nanostructures de plasma, se produisant durant l'interaction.

Finalement, on effectue des simulations multi-impulsionnelles qui permettent d'observer l'évolution de la forme de la surface après chaque impulsion laser. On observe la croissance de nanostructures de surface ayant une période et une orientation semblables à celles obtenues dans la densité du plasma après sa reconfiguration. Ceci confirme l'hypothèse que les motifs observés dans le plasma peuvent effectivement être inscrits de façon permanente dans la forme de la surface.

Abstract

The interactions between intense laser pulses and a dielectric medium are studied, first in a general perspective, then in the context of the fabrication of self-organized surface nanostructures. After going through the rudiments of electromagnetism, optics and plasma physics, the first major contribution of this study is presented. A novel model for laser-induced plasma formation in dielectrics, the *delayed rate equations* model (DRE) is described. This ionization model has several advantages, among which are the ease of implementation in numerical simulations and low computational cost, while preserving all the advantages of the state of the art model that can be incorporated in tridimensional simulations.

The emergence of periodic self-organized nanostructures at the initially rough and random surface of materials after being exposed to intense light is then numerically studied in a time-domain electromagnetic framework. The second major contribution is the implementation of a feedback loop in the simulations, between the electromagnetic field and the plasma formation. Simulations reveal a new phenomenon, the self-reconfiguration of plasma nanostructures, which occurs at the laser pulse time scale.

Finally, multi-pulses simulations are performed, revealing the evolution of the shape of the irradiated surface after each laser pulse. The growth of surface nanostructures with period and orientation similar to what was observed in the plasma density, after its reconfiguration, is observed. This confirms the hypothesis that the plasma patterns can effectively be permanently inscribed in an irradiated surface.

Table des matières

Résumé	ii
Abstract	iii
Table des matières	iv
Liste des contributions	vii
Liste des symboles	ix
Liste des figures	xiv
Liste des capsules PyPlasma	xviii
Remerciements	xx
Introduction	1
I Bases théoriques : Interactions entre matière et rayonnement	5
1 Courants intra-bande	6
1.1 Matière : Le modèle à deux bandes	7
1.1.1 De l'atome à la matière condensée	7
1.1.2 Énergie de Fermi	8
1.2 Rayonnement : Les équations de Maxwell	10
1.3 Courants liés	13
1.3.1 Optique linéaire	13
1.3.2 Optique non-linéaire	15
1.4 Courants libres	23
1.4.1 Métaux et plasmas	23
1.4.2 Échanges d'énergie entre rayonnement et plasma	27
1.4.3 Masses effectives et masse réduite	31
2 Courants inter-bande	33
2.1 Ionisation	33
2.2 Ionisation par rayonnement	35

2.2.1	Équations de Keldysh	36
2.2.2	Armortissement de l'effet Stark	40
2.3	Ionisation par impact	42
2.3.1	Modèle à taux simple	42
2.3.2	Modèle à taux multiples	45
2.3.3	Modèle à taux décalés	48
2.4	Analyse numérique des modèles de formation de plasma	52
2.5	Calibration du modèle à taux décalés aux expériences	57
2.6	Avalanche d'ionisations sous-picoseconde	60
 II Méthodes numériques : Électromagnétisme de surface		63
3	Discrétisation et intégration numérique	64
3.1	Méthode des différences finies	64
3.2	Discrétisation des équations de Maxwell	67
3.2.1	Stabilité numérique	69
3.2.2	Discrétisation du modèle de Lorentz	70
3.2.3	Discrétisation du modèle de Drude	70
3.3	Simulation d'une interaction entre une impulsion laser et un diélectrique	71
3.3.1	Conditions frontières	73
3.3.2	Source laser transparente	75
4	Interférences électromagnétiques de surface	78
4.1	Motivation	78
4.2	Introduction aux réseaux de surface	79
4.3	Patrons d'interférence du modèle de Sipe	80
4.4	Affranchissement des contraintes de Sipe par intégration numérique	83
4.5	Effets de la morphologie de la rugosité de surface	88
4.5.1	Fonctions aléatoires : du bruit binaire au bruit fractal	88
4.5.2	Simulations avec différentes implémentations de la rugosité	90
4.6	Effets de l'oxydation de la surface	90
4.7	Conclusions	94
 III Auto-organisation		96
5	Auto-organisation intra-impulsion du plasma	97
5.1	Motivation	97
5.2	Rétroaction statique : théorie de Sipe-Drude	100
5.3	Rétroaction dynamique d'un plasma en formation	102
5.3.1	Auto-reconfiguration des structures de plasma	103
5.3.2	Le rôle des réflexions sur le plasma inhomogène	104
5.3.3	Caractéristiques des structures de plasma	109
5.3.4	Robustesse	111
5.4	Conséquences du décalage de l'avalanche d'ionisations sur la reconfiguration	113

6	Auto-organisation inter-impulsion structurelle	116
6.1	Motivation	116
6.2	Incubation	117
6.3	Diminution du seuil de dommage	118
6.3.1	Modèle empirique	118
6.3.2	Modèle générique	119
6.4	Implémentation des pièges aux simulations	120
6.4.1	Pièges intrinsèques	121
6.4.2	Simulations multi-impulsionnelles	123
6.4.3	Création de pièges extrinsèques	128
6.5	Ablation laser et croissance de réseaux de surface	131
6.5.1	Rétroaction par ablation de la surface	131
6.5.2	Taux d'ablation	134
6.5.3	Évolution de la morphologie de la surface	134
	Conclusion	140
	A Théorie de Sipe	143
	Bibliographie	147

Liste des contributions

Articles avec comité de lecture

1. Camilo Florian, **Jean-Luc Déziel**, Sabrina V. Kirner , Jan Siegel, and Jörn Bonse
The Role of the Laser-Induced Oxide Layer in the Formation of Laser-Induced Periodic Surface Structures
Nanomaterials, Vol. **10**, pp. 147 (2020)
2. **Jean-Luc Déziel**, Louis J. Dubé, Sandra H. Messaddeq, Younès Messaddeq, and Charles Varin
Femtosecond Self-Reconfiguration of Laser-Induced Plasma Patterns in Dielectrics
Physical Review B, Vol. **97**, pp. 205116 (2018)

Article en révision

1. **Jean-Luc Déziel**, Louis J. Dubé, and Charles Varin
Delayed-Rate Equations Model for Femtosecond Laser-Induced Breakdown in Dielectrics
Soumis à Physical Review B

Conférences internationales

1. **Jean-Luc Déziel**, Louis J. Dubé, Sandra H. Messaddeq, Younès Messaddeq, and Charles Varin
Femtosecond Self-Reconfiguration of Laser-Induced Plasma Patterns in Dielectrics
Conference on Laser Ablation (COLA) 2017
2. **Jean-Luc Déziel**, Louis J. Dubé, Sandra H. Messaddeq, Younès Messaddeq, and Charles Varin
Femtosecond Self-Reconfiguration of Laser-Induced Plasma Patterns in Dielectrics
Photonics North 2017

3. **Jean-Luc Déziel**, Charles Varin, Louis J. Dubé, and Younès Messaddeq
Toward the Dynamical Modelization of Self-Organized Plasma Formation in Solids
Photonics North 2016

Liste des symboles

Constantes élémentaires

c	Vitesse de la lumière dans le vide	$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$	$2.998 \cdot 10^8$
\hbar	Constante de Planck réduite	$\text{kg}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$	$1.055 \cdot 10^{-34}$
q	Charge élémentaire	$\text{A}\cdot\text{s}$	$1.602 \cdot 10^{-19}$
m_0	Masse de l'électron	kg	$9.109 \cdot 10^{-31}$
ϵ_0	Permittivité du vide	$\text{A}^2\cdot\text{s}^4\cdot\text{kg}^{-1}\cdot\text{m}^{-3}$	$8.854 \cdot 10^{-12}$
μ_0	Perméabilité du vide	$\text{kg}\cdot\text{m}\cdot\text{A}^{-2}\cdot\text{s}^{-2}$	$1.257 \cdot 10^{-6}$
k_B	Constante de Boltzmann	$\text{kg}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$	$1.381 \cdot 10^{-23}$

Électromagnétisme

\vec{E}	Champ électrique	$\text{kg}\cdot\text{m}\cdot\text{A}^{-1}\cdot\text{s}^{-3}$	
\vec{D}	Densité de flux électrique	$\text{A}\cdot\text{s}\cdot\text{m}^{-2}$	$\vec{D} = \epsilon_0\vec{E} + \vec{P}$
\vec{B}	Champ magnétique	$\text{kg}\cdot\text{A}^{-1}\cdot\text{s}^{-2}$	
\vec{H}	Densité de flux magnétique	$\text{A}\cdot\text{m}^{-1}$	$\vec{H} = \vec{B}/\mu_0 - \vec{M}$
\vec{P}	Polarisation	$\text{A}\cdot\text{s}\cdot\text{m}^{-2}$	$\vec{P} = \epsilon_0\chi\vec{E}$
\vec{M}	Aimantation	$\text{A}\cdot\text{m}^{-1}$	
\vec{J}	Densité de courants	$\text{A}\cdot\text{m}^{-2}$	$\vec{J} = \vec{J}_f + \vec{J}_b$
\vec{J}_f	Densité de courants libres	$\text{A}\cdot\text{m}^{-2}$	
\vec{J}_b	Densité de courants liés	$\text{A}\cdot\text{m}^{-2}$	$\vec{J}_b = \partial\vec{P}/\partial t$

Optique

χ	Susceptibilité	-	
$\chi^{(n)}$	Susceptibilité d'ordre n	$A^n \cdot s^{3n} \cdot kg^{-n} \cdot m^{-n}$	
ϵ	Permittivité	$A^2 \cdot s^4 \cdot kg^{-1} \cdot m^{-3}$	$\epsilon = \epsilon_0 \epsilon_r$
ϵ_r	Permittivité relative	-	$\epsilon_r = (1 + \chi)$
n_0	Indice de réfraction intrinsèque (sans ionisation)	-	
n	Indice de réfraction	-	$n = \epsilon_r^{1/2}$
ω_0	Fréquence de résonance	s^{-1}	
γ_b	Taux d'amortissement des électrons liés	s^{-1}	
R	Réflectivité	-	$R = \left \frac{n-1}{n+1} \right ^2$

Laser

λ	Longueur d'onde	m	$\lambda = 2\pi c/\omega$
ω	Fréquence angulaire	s^{-1}	$\omega = 2\pi c/\lambda$
\vec{k}_i	Vecteur d'onde incident	m^{-1}	
I	Intensité	$kg \cdot s^{-3}$	$I(t) = n\epsilon_0 c E^2(t)$
F	Fluence	$kg \cdot s^{-2}$	$F = \int_{-\infty}^{\infty} I(t) dt$
τ	Durée d'impulsion	s	
θ	Angle d'incidence	s	
N	Nombre d'impulsions	-	

Matière condensée

T	Température	K	
T_e	Température des électrons	K	
\mathcal{E}_{kin}	Énergie cinétique moyenne	$\text{kg}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-2}$	
$\mathcal{E}_{\text{kin}}^e$	Énergie cinétique moyenne des électrons dans la bande de conduction	$\text{kg}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-2}$	
$\mathcal{E}_{\text{kin}}^h$	Énergie cinétique moyenne des trous dans la bande de valence	$\text{kg}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-2}$	
ρ_{mol}	Densité d'atomes ou molécules	m^{-3}	
σ_{mol}	Section efficace moléculaire	m^2	
ρ_n	Densité d'atomes ou molécules neutres	m^{-3}	
\mathcal{E}_F	Énergie de Fermi	$\text{kg}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-2}$	
\mathcal{E}_g	Énergie de la bande interdite	$\text{kg}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-2}$	
m_e	Masse effective de l'électron dans la bande de conduction	kg	
m_h	Masse effective du trou dans la bande de valence	kg	
m_r	Masse réduite de la paire électron-trou	kg	$(m_e^{-1} + m_h^{-1})^{-1}$
ρ	Densité du plasma	m^{-3}	
ρ_c	Densité de plasma critique	m^{-3}	$\left(\frac{\epsilon_0 m}{q^2}\right) (\gamma^2 + \omega^2)$
ω_p	Fréquence de plasma	s^{-1}	$\omega_p^2 = q^2 \rho / m \epsilon_0$
γ	Taux d'amortissement du plasma	s^{-1}	
\mathcal{E}_p	Énergie pondéromotrice	$\text{kg}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-2}$	$\frac{q^2 E^2}{4m(\gamma^2 + \omega^2)}$
γ_{jh}	Taux d'absorption par effet Joule	s^{-1}	$\frac{2\gamma}{\hbar\omega} \mathcal{E}_p$
γ_r	Taux de recombinaison	s^{-1}	
γ_e^e	Taux de collisions électron-électron	s^{-1}	
γ_n^e	Taux de collisions électron-atome/molécule neutre	s^{-1}	
γ_n^h	Taux de collisions trou-atome/molécule neutre	s^{-1}	

Ionisation

k	Ordre de l'ionisation multiphotonique	-	$k = \lceil \mathcal{E}_c / \hbar\omega \rceil$
\mathcal{E}_i	Énergie d'ionisation	$\text{kg}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-2}$	
Γ	Paramètre de Keldysh	-	$\Gamma = \frac{\omega\sqrt{m\mathcal{E}_g}}{qE}$
ν	Taux d'ionisation	s^{-1}	
ν_{fi}	Taux d'ionisation par rayonnement	s^{-1}	
ν_{ii}	Taux d'ionisation par impact	s^{-1}	
ρ_{fi}	Densité du plasma due à l'ionisation par rayonnement	m^{-3}	
ρ_{ii}	Densité du plasma due à l'ionisation par impact	m^{-3}	
α	coefficient d'impact (SRE)	s^2/kg	
\mathcal{E}_c	Énergie critique	$\text{kg}\cdot\text{m}^2\cdot\text{s}^{-2}$	$\left(1 + \frac{m_r}{m_h}\right)(\mathcal{E}_g + \mathcal{E}_p)$
ξ	Fraction des porteurs de charge contribuant à l'ionisation par impact	-	

Incubation

\mathcal{E}_t	Énergie de ré-ionisation des électrons piégés	m^{-3}	
ρ_t	Densité d'électrons piégés	m^{-3}	
γ_t	Taux de transitions de la bande de conduction vers les pièges	s^{-1}	
γ'_t	Taux de relaxation des électrons piégés	s^{-1}	
ν_t	Taux de ré-ionisation des électrons piégés	s^{-1}	
ν'_t	Taux de transitions de la bande de valence vers les pièges	s^{-1}	
D_t	Densité de pièges	m^{-3}	$D_t = D_t^i + D_t^e$
D_t^i	Densité de pièges intrinsèques	m^{-3}	
D_t^e	Densité de pièges extrinsèques	m^{-3}	
$D_{t,\text{max}}$	Densité de pièges maximale	m^{-3}	
β_t	Probabilité de création de piège	-	

Différences finies

N_t	Nombre de pas temporels	-	
n_t	Indice du temps discret	-	
i	Indice de position en x	-	
j	Indice de position en y	-	
k	Indice de position en z	-	
δ_t	Discrétisation temporelle	s	
δ_x	Discrétisation spatiale en x	m	
δ_y	Discrétisation spatiale en y	m	
δ_z	Discrétisation spatiale en z	m	
i_L	Indice de la position de la source laser	-	

Autres

F_{th}	Fluence au seuil de dommage	$\text{kg}\cdot\text{s}^{-2}$	
F_{av}	Fluence au seuil de déclenchement d'avalanche	$\text{kg}\cdot\text{s}^{-2}$	
κ	Exposant de la relation de puissance entre F_{th} et τ	-	$F_{th} \propto \tau^\kappa$
t_{MRE}	Délai d'avalanche (modèle MRE)	s	
t_{DRE}	Délai d'avalanche (modèle DRE)	s	
ρ^*	Densité au seuil d'ablation	m^{-3}	
Λ	Période des réseaux de surface	m^{-1}	
Λ_{\parallel}	Période des réseaux de surface parallèles à la polarisation du laser	m^{-1}	
Λ_{\perp}	Période des réseaux de surface perpendiculaires à la polarisation du laser	m^{-1}	
η	Fonction d'efficacité	-	
r_a	Amplitude de la rugosité de surface	m	
T_{Oxy}	Épaisseur de la couche oxydée	m	
A_{HSFLs}	Amplitude des HSFLs	m	

Liste des figures

1.1	Système masse-ressort	6
1.2	Densification des niveaux d'énergie	8
1.3	Modèle à deux bandes et énergie de Fermi	9
1.4	Propagation d'une impulsion laser dans le vide	11
1.5	Transmission et réflexion d'une impulsion laser du vide vers un diélectrique	16
1.6	Transmission et réflexion d'une impulsion laser du vide vers un diélectrique ayant une susceptibilité d'ordre 2	19
1.7	Transmission et réflexion d'une impulsion laser du vide vers un diélectrique ayant une susceptibilité d'ordre 3	22
1.8	Transmission et réflexion d'une impulsion laser dans un plasma de densité sous-critique.	26
1.9	Transmission et réflexion d'une impulsion laser dans un plasma de densité sur-critique.	27
1.10	Énergie pondéromotrice et effet Joule delon le modèle de Drude	29
1.11	Transfert de puissance entre le champ et les porteurs de charge lors d'une transmission d'une impulsion laser	30
2.1	Équivalence entre le déplacement d'un électron négatif ou d'un trou positif dans la direction inverse.	34
2.2	Déformation du puits de potentiel atomique en présence d'un champ électromagnétique externe	36
2.3	Taux d'ionisation par rayonnement selon la formule de Keldysh pour un milieu diélectrique	40
2.4	Taux d'ionisation par rayonnement en prenant en compte la correction pour le taux d'amortissement du plasma	41
2.5	Évolution de la densité du plasma à la surface d'un matériau diélectrique irradié par une impulsion laser obtenue avec le modèle SRE	44
2.6	Densité du plasma et sa distribution d'énergie à la surface d'un matériau diélectrique irradié par une impulsion laser obtenue avec le modèle MRE	48
2.7	Fraction de porteurs de charge ayant une énergie cinétique supérieure à l'énergie critique	49
2.8	Densité du plasma et sa distribution d'énergie à la surface d'un matériau diélectrique irradié par une impulsion laser obtenue avec le modèle DRE	51
2.9	Comparaison des taux d'ionisations obtenus avec les modèles SRE, MRE ou DRE	54
2.10	Densités, énergies cinétiques et taux d'absorption du plasma prédits par le modèle DRE pour différentes durées d'impulsion	56

2.11	Comparaison entre les prédictions du modèle DRE et des résultats expérimentaux pour les seuils de fluences en fonction de la durée d'impulsion	59
2.12	Comparaison entre les seuils de fluence prédits numériquement et mesurés expérimentalement, en fonction de la durée d'impulsion pour la silice.	62
3.1	Discrétisation de la variable continue t en un ensemble de valeurs discontinues.	65
3.2	Exemple d'intégration numérique avec la méthode des différences finies	66
3.3	Cellule de Yee tridimensionnelle	68
3.4	Conséquences d'une simulation électrodynamique en l'absence de conditions frontières réalistes	72
3.5	Couches absorbantes parfaitement adaptées	75
3.6	Injection d'une source lumineuse transparente dans une simulation numérique .	77
4.1	Interférence entre l'onde incidente et les ondes diffusées à la surface rugueuse .	80
4.2	Fonction d'efficacité prédites par le modèle de Sipe pour différents indices de réfraction complexes	81
4.3	Géométrie du domaine d'intégration pour l'équivalent numérique du modèle de Sipe	83
4.4	Comparaison entre les fonctions d'efficacité obtenues avec la méthode analytique ou la méthode numérique pour un comportement de type-d	84
4.5	Comparaison entre les fonctions d'efficacité obtenues avec la méthode analytique ou la méthode numérique pour un comportement de type-s	86
4.6	Section unidimensionnelle de la fonction d'efficacité pour un comportement de type-d	87
4.7	Section unidimensionnelle de la fonction d'efficacité pour un comportement de type-s	87
4.8	Fonction d'efficacité à différentes profondeurs sous la surface rugueuse	88
4.9	Position de la surface résultante de différentes implémentations de la rugosité de surface.	89
4.10	Effets du choix d'implémentation de la rugosité de surface sur la fonction d'efficacité	91
4.11	Domaine de simulation pour l'étude de l'importance de l'oxydation sur un échantillon de nitrure de chrome	92
4.12	Intensité lumineuse moyenne sous une surface irradiée en fonction de l'amplitude des nanostructures périodiques à la surface de la couche oxydée	93
4.13	Intensité lumineuse moyenne sous une surface irradiée en fonction de l'épaisseur de la couche oxydée	94
5.1	Comparaison entre les résultats d'une intégration numérique de la moyenne de l'intensité lumineuse sous une surface rugueuse et une observation expérimentale au microscope électronique de LIPSS formés à la surface d'un échantillon de silice	98
5.2	Comparaison entre les résultats d'une intégration numérique de la moyenne de l'intensité lumineuse sous une surface rugueuse et une observation expérimentale au microscope électronique de LIPSS formés à la surface d'un échantillon de silicium	99

5.3	Fonctions d'efficacité prédites par le modèle de Sipe-Drude pour la silice à différents stades d'ionisation	101
5.4	Représentation schématique des simulations intégrant une boucle de rétroaction dynamique intra-impulsion	103
5.5	Simulation du phénomène d'auto-reconfiguration	104
5.6	Importances respectives des réflexions longitudinales et transversales lors d'une auto-reconfiguration	106
5.7	Vue transversale des structures observées avant et après l'auto-reconfiguration des nanostructures de plasma	107
5.8	Modes de résonances impliqués dans le processus d'auto-reconfiguration	109
5.9	Vue d'ensemble des différentes nanostructures pouvant être observées dans les résultats du modèle de rétroaction dynamique intra-impulsion	110
5.10	Exemples représentatifs des types de nanostructures périodiques observées dans les résultats du modèle de rétroaction dynamique intra-impulsion	111
5.11	Simulation de l'auto-reconfiguration des structures de plasma avec l'ionisation par rayonnement comme unique mécanisme de formation de plasma	112
5.12	Auto-reconfiguration des structures de plasma avec l'utilisation du modèle d'ionisation à taux décalés.	114
6.1	Diminution relative du seuil de fluence laser en fonction du nombre d'impulsions laser due aux effets de l'incubation.	118
6.2	Comparaison entre les seuils de fluence expérimentaux et les modèles empirique et générique.	119
6.3	Transitions entre les bandes de valence et de conduction en présence de pièges dans la bande interdite.	122
6.4	Densités d'électrons dans la bande de conduction et dans les pièges intrinsèques lors d'une interaction avec une impulsion laser gaussienne pour différentes densités de pièges intrinsèques.	123
6.5	Densités d'électrons dans la bande de conduction et dans les pièges intrinsèques lors d'une interaction avec une impulsion laser gaussienne pour différents niveaux d'énergie.	124
6.6	Nombre de boîtes remplies après les lancers de balles, calculé numériquement ou analytiquement.	125
6.7	Accumulation d'électrons piégés au cours d'une interaction avec 8 impulsions laser.	127
6.8	Simulation de la diminution de la fluence seuil en fonction du nombre d'impulsions laser due à la présence de pièges intrinsèques.	128
6.9	Augmentation graduelle de la densité du plasma et d'électron piégés en fonction de la création de pièges extrinsèques durant une interaction avec 35 impulsions laser.	130
6.10	Simulation de la diminution de la fluence seuil en fonction du nombre d'impulsions laser due à la présence de pièges intrinsèques et la création de pièges extrinsèques.	131
6.11	Auto-reconfiguration des structures dans la densité du plasma lors d'une interaction multi-impulsionnelle, sous l'influence de l'incubation du matériau.	132
6.12	Résumé des différentes boucles de rétroaction.	133

6.13 Simulations unidimensionnelles de l'ablation d'une surface irradiée par de multiples impulsions laser.	135
6.14 Position de la surface d'un matériau irradié par de multiples impulsions laser. .	137
6.15 Position de la surface d'un matériau irradié par de multiples impulsions laser. .	139
A.1 Géométrie employée pour obtenir les solutions du modèle analytique de Sipe .	143

Liste des capsules PyPlasma

1.1	Propagation d'une impulsion laser	12
1.2	Milieu transparent	16
1.3	Susceptibilité d'ordre 2	20
1.4	Susceptibilité d'ordre 3	22
1.5	Plasma sous-critique	25
1.6	Plasma sur-critique	26
1.7	Transfert de puissance	31
2.1	Modèle à taux simple (SRE)	43
2.2	Modèle à taux multiples (MRE)	47
2.3	Modèle à taux décalés (DRE)	51
3.1	Réflexions non physiques	73
3.2	Conditions frontières	74
3.3	Source transparente	77
4.1	Fonction d'efficacité	85
5.1	Auto-reconfiguration avec DRE	115
6.1	Pièges intrinsèques	124
6.2	Accumulation d'électrons piégés	127
6.3	Pièges extrinsèques	130
6.4	Ablation	136
6.5	Croissance de nanostructures	138

*I find that the harder I work,
the more luck I seem to have.*

Thomas Jefferson

Remerciements

Je profite de l'occasion pour remercier certaines personnes très spéciales qui m'ont accompagnées durant ce projet.

À mes collègues de recherche, Edward Laurence, Charles Murphy, Guillaume St-Onge, Jean-Gabriel Young, Vincent Thibeault et Xavier Roy-Pomerleau, je vous suis reconnaissant pour toutes ces discussions enrichissantes, réliées ou pas à nos projets scientifiques. Vous avez tous un immense potentiel et je vous souhaite de continuer à accomplir de belles choses.

Aux examinateurs de cette thèse, Younès Messaddeq, Michel Piché et François Vidal, je vous remercie de votre intérêt pour mes recherches et du temps que vous y accordez. J'espère qu'en retour, je pourrai vous apprendre quelques trucs.

À mon co-directeur, Charles Varin, je te remercie de m'avoir accompagné tout au long de ce chemin. Je tiens à dire que j'ai sincèrement apprécié travailler avec toi et que tu m'as été d'une aide inestimable. Je garderai toujours de très bons souvenirs de mes passages à Ottawa et j'espère avoir l'occasion d'y retourner bientôt. D'une certaine façon, on naviguait tous deux en eaux inconnues et j'espère que tu as apprécié ta première expérience en tant que co-directeur de thèse. L'avenir nous dira si tu te lanceras dans un tel projet à nouveau (pour ma part, c'est malheureusement mon dernier doctorat).

Je termine finalement par mon directeur de thèse, M. Louis J. Dubé qui m'a chaleureusement accueilli dans son groupe de recherche il y a maintenant sept belles années. Vous avez toujours été là pour m'encourager à me dépasser et je n'aurais jamais pu autant progresser que sous votre aile. Je vous suis infiniment reconnaissant, pour tous vos efforts, vos enseignements et votre sagesse. Aujourd'hui, je souhaite à un grand mentor un nouveau départ vers une retraite bien méritée. Par contre, il va falloir se recroiser prochainement, car j'ai accumulé au cours des années une importante dette qui ne peut être remboursée qu'en liquide, idéalement dans un pichet.

Introduction

Il se produit un phénomène plutôt surprenant lorsque l'on expose un matériau à des impulsions laser intenses près du seuil d'ablation. Sous ce seuil, le rayonnement laser est simplement transmis ou réfléti alors qu'au-delà du seuil, le matériau est sévèrement endommagé. Toutefois, il existe un régime transitoire où des nanostructures complexes, périodiques et auto-organisées se forment à la surface du matériau irradié. On réfère à ces structures par des réseaux de surface ou par des *laser-induced periodic surface structures* (LIPSS). Depuis leur découverte dans les années 60 [8], de nouvelles expériences sur divers matériaux ont révélé qu'il existe une grande variété de nanostructures distinctes ; de périodes et d'orientations différentes selon les conditions de l'expérience [109]. La polarisation du laser, sa longueur d'onde, son intensité, son angle d'incidence, sa durée d'impulsion et le nombre d'impulsions sont tous des paramètres qui peuvent entraîner la formation de LIPSS qualitativement différentes. La nature du matériau irradié est également susceptible de produire différentes formes de structures.

Certaines structures ont pu être regroupées en familles aux caractéristiques communes et leurs mécanismes de formation être du moins partiellement expliqués [88, 91, 9]. Ce qui est fascinant, c'est que cette panoplie de familles de nanostructures ont toutes des origines distinctes qui impliquent des concepts et mécanismes différents pour chacune d'entre elles. La richesse de ce phénomène en fait un terrain de jeu idéal afin d'expérimenter, tester et explorer un vaste panorama des sphères de la photonique, la physique des plasmas, la matière condensée et la mécanique des fluides.

C'est avec cet état d'esprit que ces travaux ont été dirigés. Avec une quantité phénoménale de résultats expérimentaux disponibles dans la littérature et une forte demande pour des études théoriques afin d'aider à comprendre et classifier ces nanostructures, il y avait des opportunités de toutes parts. Tout au long de cet ouvrage, qui se veut une vue d'ensemble des concepts impliqués dans la formation des LIPSS, certaines de ces opportunités qui n'ont pu être explorées seront bien mises en évidence afin d'encourager la poursuite de ces travaux. Pour certaines d'entre elles, une partie du travail ou des pistes ont été développées. Puis,

quelques contributions principales furent menées à terme et sont publiées ou en voie de l'être [28, 33, 27, 31, 30].

Organisation de la thèse.

Chapitre 1 : Courants intra-bande. Le premier chapitre couvre les principaux concepts théoriques élémentaires de l'optique et de la physique des plasmas impliqués lors d'une interaction entre matière et rayonnement. Se voulant autosuffisant, la plupart des développements prennent pour origine un simple atome représenté par un système masse-ressort classique. Le modèle à deux bandes est introduit, un outil simplifié permettant une description phénoménologique du comportement des électrons dans un matériau irradié.

Chapitre 2 : Courants inter-bande. La formation de plasma induit par des impulsions laser intenses est le centre d'intérêt de ce second chapitre. Les différents mécanismes connus de l'ionisation de la matière sont décrits par les principaux modèles utilisés dans la littérature tels que le modèle de *Keldysh* et l'équation à taux simple. La première contribution originale majeure y est présentée, les équations à taux décalés (*Delayed rate equations*) [28]. Ce nouveau modèle se révèle être beaucoup plus simple, élégant et pratique que son compétiteur direct.

Chapitre 3 : Implémentation numérique. Ce troisième chapitre décrit les outils numériques qui sont nécessaires à la réalisation des calculs subséquents. La méthode des différences finies occupera un rôle dominant. Les équations de Maxwell qui décrivent l'électrodynamique sont discrétisées avec le schéma bien connu *finite-difference time-domain* (FDTD) qui permet de simuler bon nombre de phénomènes électromagnétiques, du moment qu'ils ne sont pas trop exotiques.

Chapitre 4 : Interférences électromagnétiques de surface. C'est finalement lors de ce quatrième chapitre que la formation des LIPSS est abordée en bonne et due forme. On y présente d'abord le modèle analytique de Sipe qui fut le premier pas majeur afin d'expliquer comment peuvent se former les réseaux de surface. Bien que révolutionnaire, ce modèle a des limites et ne peut expliquer toute la richesse du phénomène et la variété de nanostructures périodiques de surface qu'il est possible de fabriquer en laboratoire. Utilisant les méthodes numériques présentées au chapitre précédent, on montre ensuite comment s'affranchir de ses contraintes. Une comparaison entre les résultats des méthodes analytiques et des simulations numériques est effectuée, avant d'explorer des nouvelles pistes originales. Notamment, l'importance de l'oxydation de la surface d'un matériau durant l'irradiation menant à la formation de deux types de nanostructures superposées [33].

Chapitre 5 : Auto-organisation intra-impulsion du plasma. Dès ce chapitre, le concept d'auto-organisation est introduit, fondamental lors de la détermination des caractéristiques des réseaux de surface formés lors d'une irradiation. Une première tentative plutôt timide d'incorporation de cet élément aux calculs fut une extension au modèle analytique déjà établi, le modèle de Sipe-Drude qui a eu un certain succès, mais qui ne permet qu'une forme très rudimentaire et limitée d'auto-organisation. Ce sera l'occasion de présenter la seconde contribution originale majeure de cette thèse, la simulation d'une reconfiguration dynamique de nanostructures auto-organisées possible uniquement en s'affranchissant des limites de la théorie de Sipe-Drude [27]. Une telle forme d'auto-organisation complète peut être implémentée en combinant aux idées de la théorie de Sipe-Drude les concepts et modèles développés dans les chapitres précédents.

Chapitre 6 : Auto-organisation inter-impulsion structurelle. Dans le sixième et dernier chapitre de cet ouvrage, un autre mécanisme d'auto-organisation est abordé. Ne se limitant plus à l'échelle temporelle propre à une impulsion laser unique, on attaque désormais les interactions multi-impulsionnelles afin d'étudier l'auto-organisation inter-impulsion des réseaux de surface au niveau structurel. On implémente deux nouveaux mécanismes aux simulations, soient l'incubation et l'ablation, qui se produisent entre les impulsions laser. Ceci va ultimement permettre de simuler l'évolution de la forme de la surface d'un matériau après chaque nouvelle exposition à une impulsion laser.

PyPlasma 0.1: Installation

Une grande partie des résultats de cette thèse peuvent être reproduits à l'aide du module Python, PyPlasma [29], que l'on a rendu disponible en ligne : <https://github.com/jldez/pyplasma>.

Une série de scripts basés sur ce module a été développée dans le but de reproduire certaines figures en version animée, ou bien pour expérimenter avec certains paramètres. Ils sont situés sous le répertoire *pyplasma/examples/capsules/* du module, accessibles après l'installation. Chacun est associé à une figure de la thèse, accompagnée d'une capsule explicative.

Installation : `pip3 install pyplasma`

Installation manuelle :

1. `git clone https://github.com/jldez/pyplasma.git`
2. `cd pyplasma`

3. python3 setup.py install

Afin de vérifier l'installation : `python3 examples/one_dimension.py`

Deux fenêtres devraient apparaître, une montrant le champ électrique d'une impulsion laser et l'autre la densité de plasma dans le matériau irradié.

Première partie

**Bases théoriques : Interactions entre
matière et rayonnement**

Chapitre 1

Courants intra-bande

Demandez à un chimiste, un géologue et un physicien de décrire un atome et vous aurez trois réponses différentes. Le chimiste vous parlera de configuration d'orbitales électroniques, de dipôles ou d'électronégativité. Demandez à un géologue, il vous parlera de masses atomiques, d'isotopes ou de radioactivité. Pour les physiciens, certains s'emporteront dans les confins de la mécanique quantique, d'autres philosopheront sur la nature même des particules et de l'énergie, puis une part d'entre eux vous dessinera quelque chose de semblable à la figure 1.1.

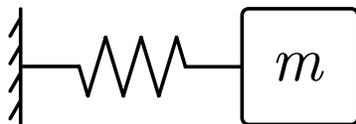


FIGURE 1.1 – Système masse-ressort. Un électron de masse m est lié à un noyau atomique par une force de rappel représentée par un ressort.

Bien sûr, il ne devrait pas y avoir de désaccord entre ces différentes descriptions, car chacune pourrait représenter un aspect différent de l'atome, dans le but de modéliser un comportement pertinent au champ d'étude en question. Par exemple, le système masse-ressort de la figure 1.1 est une représentation amplement suffisante de l'atome afin de poser les bases de l'optique et de la physique des plasmas tel qu'il est fait dans ce chapitre.

C'est là toute la puissance de la modélisation, on peut mettre de côté bien des aspects d'un système parfois très complexe. Dans cet exemple, on néglige les interactions entre électrons, ainsi que deux dimensions spatiales, car c'est bien souvent superflu pour ce que l'on veut étudier. Le but est de bien cerner l'essentiel d'un système afin de répondre à un problème donné, par exemple les mouvements harmoniques de l'électron qui permettent d'obtenir une expression pour la permittivité d'un matériau si c'est tout ce que l'on cherche.

Ainsi, l'objectif de ce chapitre est de poser les bases théoriques de l'optique et des interactions entre matière et rayonnement qui seront nécessaires aux prochains chapitres, avec comme point de départ un simple système masse-ressort.

Dans les deux sections suivantes, les concepts de matière et de rayonnement sont présentés de façon à mettre l'accent sur leurs caractéristiques et comportements pertinents pour les travaux des prochains chapitres. À la section 1.1, on aborde l'aspect *matière* avec le modèle à deux bandes où on introduit le concept de bandes d'énergie qui sera très souvent utilisé tout au long de cet ouvrage. Ensuite, les équations de Maxwell sont présentées à la section 1.2 afin de définir la notation des différentes quantités propres au *rayonnement*. Suivant les descriptions de ces deux éléments, leurs *interactions* et la notion de courants sont abordées dès la section 1.3.

1.1 Matière : Le modèle à deux bandes

1.1.1 De l'atome à la matière condensée

Classiquement, on peut représenter l'atome par des balles sphériques solides, les électrons tournant autour d'un noyau à la manière de planètes orbitant le soleil. D'un autre point de vue, dans le domaine de la mécanique quantique, un électron lié à un noyau atomique est mieux représenté par un nuage de probabilité, une orbitale électronique. L'électron n'est pas localisé en un point, mais sa densité de probabilité de présence à un endroit est concentrée dans ces orbitales aux formes variées.

Autre conséquence de la mécanique quantique, l'électron lié à un noyau atomique est contraint à des niveaux d'énergie discrets, contrairement à un électron libre pouvant prendre n'importe quelle valeur d'énergie. Cela se manifeste, par exemple, par des pics d'absorption lumineuse très prononcés quand l'énergie des photons $\hbar\omega$ (où \hbar est la constante de Planck réduite et ω est la fréquence angulaire) est près de la différence entre l'énergie de l'électron lié \mathcal{E} et un niveau supérieur. À l'inverse, quand un électron perd de l'énergie, il passe d'un niveau d'énergie élevé $\mathcal{E} + \hbar\omega$ vers un niveau plus bas d'énergie \mathcal{E} et il émet un photon d'énergie $\hbar\omega$.

Lier deux atomes afin de former une molécule entraîne la formation d'orbitales moléculaires communes aux deux atomes. À ce niveau, certains effets propres aux molécules apparaissent, l'un d'entre eux étant la formation d'un dipôle si les atomes ne sont pas du même type, brisant ainsi la symétrie des orbitales. L'arrangement macroscopique de tels dipôles fait émerger plusieurs phénomènes électromagnétiques intéressants.

Un autre effet d'une grande importance est l'augmentation du nombre de niveaux d'énergie discrets. Ajouter d'autres atomes au système fera encore augmenter la densité des niveaux

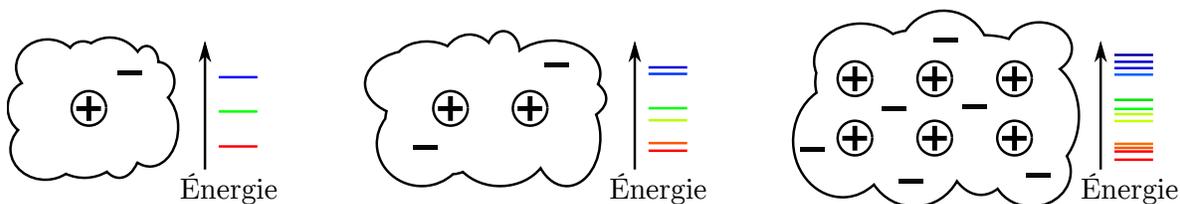


FIGURE 1.2 – De l’atome (gauche) aux molécules (milieu), puis aux matériaux macroscopiques (droite), les niveaux d’énergie se densifient.

d’énergie jusqu’au point où notre système devient macroscopique et les niveaux d’énergie sont si denses qu’ils se confondent [2]. La figure 1.2 illustre ce concept.

Là où les niveaux d’énergie sont très denses, on peut choisir de faire une simplification, soit une bande d’énergie continue. Au sein de l’une de ses bandes, un électron peut prendre n’importe quelle valeur d’énergie. Certaines fenêtres d’énergie n’accueilleront systématiquement aucun niveau d’énergie, laissant ce que l’on appelle des bandes interdites qui séparent les bandes d’énergie. Finalement, une bande d’énergie peut accueillir une population d’électrons qui ne sont pas indépendants entre eux. C’est le cas, entre autres, car ce sont des fermions soumis au principe d’exclusion de Pauli [66] qui restreint les énergies accessibles à un électron donné au sein de sa bande d’énergie. À la section 1.1.2, on explique comment ces restrictions peuvent avoir un impact important sur les propriétés macroscopiques d’un matériau, notamment la différenciation entre un diélectrique et un métal.

1.1.2 Énergie de Fermi

Les électrons sont des *fermions*, ce qui implique qu’ils sont soumis au principe d’exclusion de Pauli qui empêche deux électrons d’occuper un même état quantique [66]. L’orbitale dans laquelle se trouve un électron et son spin décrivent cet état. Et puisqu’un électron peut avoir seulement deux valeurs différentes de spin, la population de chaque orbitale est limitée à deux électrons, un de spin *up* et un de spin *down*.

Ainsi, un solide au niveau d’énergie minimal, à température $T \rightarrow 0$, n’aura pas que des électrons au niveau fondamental. Ces niveaux sont remplis par des couples d’électrons du plus bas vers les niveaux plus élevés et le dernier niveau occupé est, par définition, le niveau de l’énergie de Fermi \mathcal{E}_F . La position de l’énergie de Fermi par rapport aux bandes d’énergie est d’une importance cruciale pour le comportement d’un solide, sa réponse optique tout particulièrement.

Deux cas de positionnement de \mathcal{E}_F par rapport à la position des bandes d’énergie sont présentés à la figure 1.3. Dans le cas d’un matériau *métallique*, où l’énergie de Fermi est éloignée d’une bande interdite, une des bandes permises est partiellement, mais pas totalement peu-

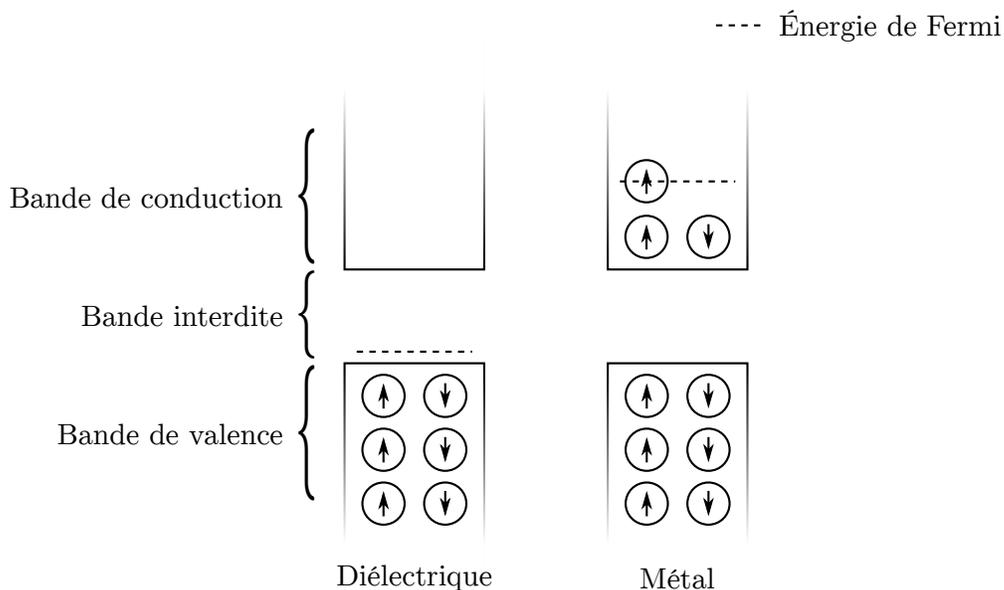


FIGURE 1.3 – (Gauche) Dans le cas d’un diélectrique à $T \rightarrow 0$, toute la bande de valence est occupée et la bande de conduction est vide. (Droite) Dans le cas d’un métal à $T \rightarrow 0$, une partie de la bande de conduction est occupée.

plée. Dans ce premier cas, les électrons de cette bande, que l’on nomme *bande de conduction*, peuvent très facilement se déplacer d’un niveau à l’autre, car ces niveaux sont très rapprochés, voire confondus.

L’autre cas, celui d’un isolant ou *diélectrique*, se produit quand l’énergie de Fermi est dans une bande interdite. Ainsi, la bande d’énergie juste au-dessous de la bande interdite est entièrement remplie (*bande de valence*) et la bande de conduction, celle du dessus, est vide. Dans ce cas-ci, les électrons peuvent que très difficilement changer de niveau d’énergie, car leur seul mouvement possible est de traverser d’un coup la bande interdite.

Le cas intermédiaire est possible, si la largeur de la bande interdite est petite (typiquement, $\mathcal{E}_g < 4$ eV). Un tel matériau est appelé un *semi-conducteur* et la population de la bande de conduction peut être assez aisément modifiée en excitant le système. Chauffer le matériau est souvent suffisant, par exemple. L’application d’un champ électromagnétique externe est aussi une solution.

Ces concepts résument les grandes lignes du modèle à deux bandes, nommé ainsi car seules les deux bandes (bandes de valence et de conduction) les plus rapprochées de l’énergie de Fermi sont prises en compte dans ce modèle. Il existe bel et bien des bandes d’énergie sous la bande de valence, mais l’énergie requise afin de faire changer de niveau les électrons qui s’y trouvent est généralement trop élevée. De même, il y a des bandes d’énergie au-dessus de la

bande de conduction qui peuvent être ignorées.

Les deux quantités qui sont particulièrement importantes à retenir sont la largeur de la bande interdite \mathcal{E}_g et la population d'électrons dans la bande de conduction. Cette dernière est plutôt décrite par une densité d'électrons, notée par ρ , en unités de particules par volume (m^{-3}).

1.2 Rayonnement : Les équations de Maxwell

Toujours dans la perspective de discuter d'interactions entre matière et rayonnement et les concepts élémentaires de l'aspect *matière* étant posés, on aborde maintenant l'aspect *rayonnement*. Il s'agit d'ondes électromagnétiques qui sont des solutions aux équations de Maxwell

$$\nabla \cdot \vec{D} = \rho, \quad (1.1a)$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0, \quad (1.1b)$$

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}, \quad (1.1c)$$

$$\nabla \times \vec{H} = \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{J}, \quad (1.1d)$$

où les champs \vec{E} et \vec{B} sont les *champs électrique et magnétique*, respectivement. La *densité de charges* est ρ et la *densité de courants* est \vec{J} . Les *champs auxiliaires* \vec{D} et \vec{H} sont responsables de la réponse d'un matériau à son exposition au champ électromagnétique. Leurs définitions sont

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}, \quad (1.2)$$

$$\vec{H} = \frac{1}{\mu_0} \vec{B} - \vec{M}, \quad (1.3)$$

avec la *permittivité* du vide ϵ_0 et la *perméabilité* du vide $\mu_0 = 1/\epsilon_0 c^2$. L'*aimantation* \vec{M} est généralement posée nulle, sauf pour certains phénomènes spécifiques. Puisque les champs \vec{B} et \vec{H} ne diffèrent alors généralement que d'un facteur de proportionnalité constant, il est commun de référer à l'un ou l'autre par le champ magnétique. Il reste finalement la *polarisation* \vec{P} qui permet de décrire la réponse optique d'un matériau.

En examinant ces équations, on peut identifier quelles sont les quantités dont on a besoin afin de décrire un phénomène électromagnétique donné. Par exemple, dans un vide absolu, il n'y a pas de charges libres ($\rho = 0$), pas de courants ($\vec{J} = 0$). Il n'y a pas non plus de charges pouvant entraîner la formation de dipôles ($\vec{P} = 0$) et l'environnement ne peut être aimanté ($\vec{M} = 0$). Les champs \vec{D} et \vec{H} deviennent proportionnels aux champs \vec{E} et \vec{B} et ces derniers sont les seuls inconnus restants. Il suffit alors de connaître des conditions frontières

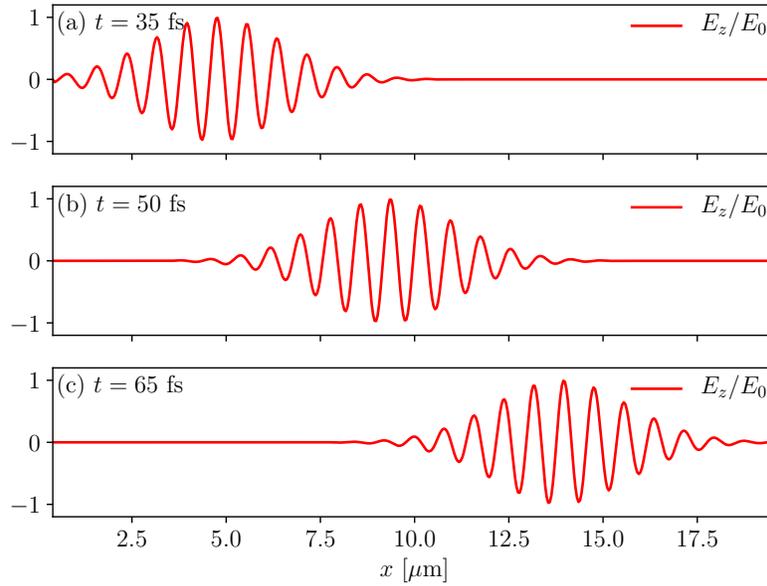


FIGURE 1.4 – Composante en z du champ électrique, pour une impulsion laser incidente décrite par l'équation (1.4) à $x = 0$. Le champ électrique à $x > 0$ est obtenu en solutionnant numériquement les équations de Maxwell avec la méthode FDTD qui ne sera abordée qu'au chapitre 3. La durée de l'impulsion est $\tau = 10$ fs et la longueur d'onde est $\lambda = 2\pi c/\omega = 800$ nm.

et le système d'équations se résout aisément. Par exemple, une impulsion laser gaussienne peut être représentée par une expression de la forme

$$\vec{E}(t) = \hat{z}E_0 \exp[-2\ln(2)(t/\tau)^2] \cos(\omega t), \quad (1.4)$$

où t est le temps, \hat{z} est un vecteur unitaire, E_0 est l'amplitude, τ est la durée de l'impulsion et ω est la fréquence angulaire. Solutionner les équations de Maxwell avec cette expression comme condition frontière ($x = 0$) permet de connaître comment cette impulsion laser évolue dans le temps et l'espace. La figure 1.4 montre les solutions pour la composante en z du champ électrique ($E_z = \vec{E} \cdot \hat{z}$) à trois temps différents. Dans le vide, sans aucune interaction, l'impulsion laser ne peut que se propager à la vitesse de la lumière, sans changer de forme ou d'amplitude. Cette solution a été obtenue numériquement avec des méthodes qui seront abordées au chapitre 3.

Dans une situation moins triviale, comme en la présence d'un matériau diélectrique n'ayant pas de charges libres (ni d'aimantation), la polarisation \vec{P} s'ajoute à la danse. Décrire et quantifier la polarisation est l'objectif de la section 1.3.

PyPlasma 1.1: Propagation d'une impulsion laser

script complet : `pyplasma/examples/capsules/1.1_pulse_propagation.py`

Les résultats de la figure 1.4 peuvent être reproduits avec le module PyPlasma. Ce premier exemple est décrit en détails, les suivants porteront sur leurs spécificités.

D'abord, on importe le module.

```
from pyplasma import *
```

Puis, on crée un domaine de simulation unidimensionnel de $20 \mu\text{m}$ de longueur. Le nombre de dimensions correspond à la longueur de la liste du premier argument, soit 1 dans le cas présent. Les deux arguments suivants ne seront pas abordés avant le chapitre 3.

```
domain = Domain(size=[20*um], grid=[500], pml_width=400*nm)
```

On crée maintenant une source lumineuse d'amplitude unitaire. Le second argument est la longueur d'onde $\lambda = 800 \text{ nm}$. On indique ensuite une durée d'impulsion $\tau = 10 \text{ fs}$ et on décale l'impulsion de 20 fs afin d'avoir le début de l'impulsion.

```
laser = Laser(E0=1, wavelength=800*nm, pulse_duration=10*fs, t0=20*fs)
```

Le laser qui vient d'être défini doit être ajouté à la simulation.

```
domain.add_laser(laser)
```

On crée ensuite un observateur, qui va permettre de visualiser le champ électrique, plus précisément, sa composante z . Si on n'indique pas la composante z , on observe plutôt la norme du vecteur $|\vec{E}|$ qui est exclusivement positive. L'argument suivant indique les valeurs minimales et maximales de ce que l'on veut observer. Ici, on a une amplitude de 1, alors la composante z du champ va osciller entre les valeurs -1 et 1 . On indique ensuite la couleur. Puis, la fréquence d'affichage est fixée à 2, afin de sauter un rafraîchissement sur 2 et accélérer l'animation. On indique ensuite que l'on souhaite afficher les résultats en boucle et la taille de l'image.

```
w = Watcher('Ez', vlim=(-1.1,1.1), c='r', out_step=2, loop=True,
            figsize=(9,3))
```

On attache l'observateur à la simulation.

```
domain.add_observer(w)
```

Finalement, on lance la simulation, d'une durée de 110 fs .

```
domain.run(110*fs)
```

1.3 Courants liés

D'un côté, on a désormais de la matière formée d'atomes condensés en un matériau solide dont les électrons peuvent occuper des bandes d'énergie (voir la section 1.1). De l'autre côté, on a un rayonnement électromagnétique décrit par les équations de Maxwell (voir la section 1.2). Dans cette section, ces deux entités se rencontrent finalement et leurs interactions sont abordées.

Une particule chargée tel un électron ou le noyau atomique, une fois plongée dans un champ électromagnétique est accélérée par la force de Lorentz [71]. Le noyau atomique étant beaucoup plus massif qu'un électron, l'effet sera moindre pour celui-ci dans un atome. C'est pourquoi les mouvements du noyau sont généralement négligés pour ne se concentrer que sur les mouvements des électrons que l'on nomme des courants. Il serait plus exact de parler de transitions énergétiques, plutôt que de mouvements ou de déplacements, mais cette analogie très classique est plus intuitive.

Dans le cadre du modèle des bandes d'énergie, les courants électroniques sont séparés en deux catégories. Il y a d'une part les *courants intra-bande* qui incluent les déplacements de l'électron au sein de sa bande d'énergie. Il y a également des *courants inter-bande* qui décrivent les transitions entre les bandes de valence et de conduction, qui sont le sujet du chapitre 2.

Les courants intra-bande sont de nouveau divisibles, en fonction de la bande au sein de laquelle les déplacements ont lieu. Les courants au sein de la bande de conduction sont des *courants libres*, abordés à la section 1.4. Les courants de la bande de valence sont les *courants liés*. Contrairement aux électrons de la bande de conduction qui peuvent librement se déplacer dans le matériau, les électrons de la bande de valence sont coincés dans le puits de potentiel entourant un atome ou une molécule. La force de Coulomb pourra tirer sur les électrons, mais une force de rappel les retiendra et leurs déplacements seront limités (d'où l'analogie entre l'atome et le système masse-ressort mentionnée au début du chapitre). Ces mouvements ont une importance majeure dans le domaine de l'optique.

1.3.1 Optique linéaire

Lorsqu'un électron est poussé hors du minimum local du potentiel atomique, la séparation de sa charge négative de celle du noyau qui est positive entraîne la formation d'un dipôle [2]. C'est en calculant ce déplacement des électrons que l'on peut trouver la polarisation \vec{P} , une conséquence macroscopique à la formation des dipôles. On peut ainsi décrire, par exemple, la réponse du matériau à un champ électromagnétique externe.

Le modèle de Lorentz [12] approxime le minimum local du potentiel par une parabole afin de retomber sur le problème de l'oscillateur harmonique. Souhaitant trouver l'équation du

mouvement des électrons liés, il faut déterminer les forces qu'ils subissent.

D'abord, l'électron est soumis à un champ unidimensionnel et monochromatique (on omet alors la notation vectorielle) de la forme $E(t) = E_0 \cos(\omega t)$, où ω est la fréquence angulaire du laser, t est le temps et E_0 est l'amplitude. La force causée par le champ externe subie par l'électron est alors $-qE(t)$, avec sa charge $-q$ et sa masse m . L'électron plongé dans un puits de potentiel parabolique subit aussi une force de rappel égale à $m\omega_0^2 x(t)$ où ω_0 est la fréquence naturelle de l'oscillateur. On peut également ajouter une dernière contribution représentant un amortissement de force $m\gamma_b \dot{x}(t)$. On développe alors l'équation du mouvement

$$m\ddot{x}(t) = \sum \text{Forces}, \quad (1.5a)$$

$$\ddot{x}(t) = -\gamma_b \dot{x}(t) - \omega_0^2 x(t) - qE(t)/m, \quad (1.5b)$$

$$\ddot{x}(t) + \gamma_b \dot{x}(t) + \omega_0^2 x(t) = -qE(t)/m. \quad (1.5c)$$

En utilisant la relation $2 \cos(\omega t) = e^{-i\omega t} + e^{i\omega t}$, on trouve la solution ¹

$$x(t) = -\frac{q}{2m} \frac{E_0 e^{i\omega t}}{\omega_0^2 - \omega^2 + i\omega\gamma_b} + c.c., \quad (1.6)$$

où $c.c.$ est le complexe conjugué. On trouve ensuite la polarisation macroscopique en sommant les contributions des N dipôles, chacune de $-qx(t)$, tel que

$$P(t) = -Nqx(t), \quad (1.7a)$$

$$= \frac{Nq^2}{2m} \frac{E_0 e^{i\omega t}}{\omega_0^2 - \omega^2 + i\omega\gamma_b} + c.c., \quad (1.7b)$$

$$= \epsilon_0 [\chi(\omega)e^{i\omega t} + \chi(-\omega)e^{-i\omega t}] \frac{E_0}{2}. \quad (1.7c)$$

Dans cette dernière équation, on a introduit une nouvelle quantité, la *susceptibilité* dont la définition est

$$\chi(\omega) = \frac{Nq^2}{\epsilon_0 m} \frac{1}{(\omega_0^2 - \omega^2 + i\omega\gamma_b)} \in \mathbb{C}. \quad (1.8)$$

Cette définition pour la susceptibilité correspond à celle du *modèle de Lorentz*. Les parties réelles et imaginaires de la susceptibilité sont

$$\text{Re}\{\chi(\omega)\} = \frac{Nq^2}{\epsilon_0 m} \frac{(\omega_0^2 - \omega^2)}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2\gamma_b^2}, \quad (1.9a)$$

$$\text{Im}\{\chi(\omega)\} = -\frac{Nq^2}{\epsilon_0 m} \frac{\omega\gamma_b}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + \omega^2\gamma_b^2}. \quad (1.9b)$$

1. La solution diffère d'un facteur 1/2 par rapport à [12], car le choix (arbitraire) de $E(t)$ diffère du même facteur. Ce facteur disparaît rapidement, en introduisant la susceptibilité qui ne dépend pas de l'amplitude du champ électrique.

Dans cette thèse, les calculs effectués sont tous dans la limite $\omega \ll \omega_0$, pour laquelle les deux dernières équations sont respectivement approximées par

$$\operatorname{Re}\{\chi(\omega)\} \sim \frac{Nq^2}{\epsilon_0 m} \frac{1}{\omega_0^2}, \quad (1.10a)$$

$$\operatorname{Im}\{\chi(\omega)\} \sim -\frac{Nq^2}{\epsilon_0 m} \frac{\gamma_b \omega}{\omega_0^4}. \quad (1.10b)$$

Dans cette limite, $\operatorname{Im}\{\chi(\omega)\} \ll \operatorname{Re}\{\chi(\omega)\}$. De plus, $\operatorname{Re}\{\chi(\omega)\}$ n'est plus une fonction de la fréquence du laser. La susceptibilité est alors bien approximée par une constante réelle χ .

On peut finalement réécrire l'expression de la densité de flux électrique [voir les équations (1.2) et (1.7c)], avec $P(t) = \epsilon_0 \chi E(t)$,

$$D(t) = \epsilon_0 E(t) + \epsilon_0 \chi E(t), \quad (1.11a)$$

$$= \epsilon_0 (1 + \chi) E(t), \quad (1.11b)$$

$$= \epsilon_0 \epsilon_r E(t), \quad (1.11c)$$

où on a défini la *permittivité relative* $\epsilon_r = (1 + \chi)$, reliée à l'*indice de réfraction* par la relation $n = \epsilon_r^{1/2}$.

Ainsi, l'interaction entre une source lumineuse et un matériau diélectrique induit des courants liés qui peuvent se traduire, dans les équations de Maxwell, simplement par l'ajout de l'indice de réfraction n . La figure 1.5 montre comment est affectée l'impulsion laser décrite par l'expression (1.4) en la présence d'un matériau ayant un indice de réfraction $n = 1.5$. De plus, afin de demeurer dans la limite $\omega_0 \gg \omega$, on utilise $\omega_0 = 15.7 \text{ fs}^{-1} \gg \omega = 2.35 \text{ fs}^{-1}$. La partie imaginaire de $\chi(\omega)$ est nulle, car on utilise également $\gamma_b = 0$. Ces valeurs pour ω_0 et γ_b sont les mêmes pour tous les calculs de cette thèse.

À l'interface entre le vide et le diélectrique, une fraction de l'impulsion laser est réfléchiée et le reste est transmis. La partie transmise voit sa longueur d'onde et sa vitesse de propagation réduite d'un facteur n .

1.3.2 Optique non-linéaire

L'optique linéaire est valide quand les oscillations de l'électron sont faibles, i.e. près du minimum local du potentiel atomique, là où l'approximation harmonique est valide. Si le champ externe est trop intense, les oscillations sont plus grandes et quand l'approximation harmonique n'est plus valide, on atteint le régime de l'optique non-linéaire.

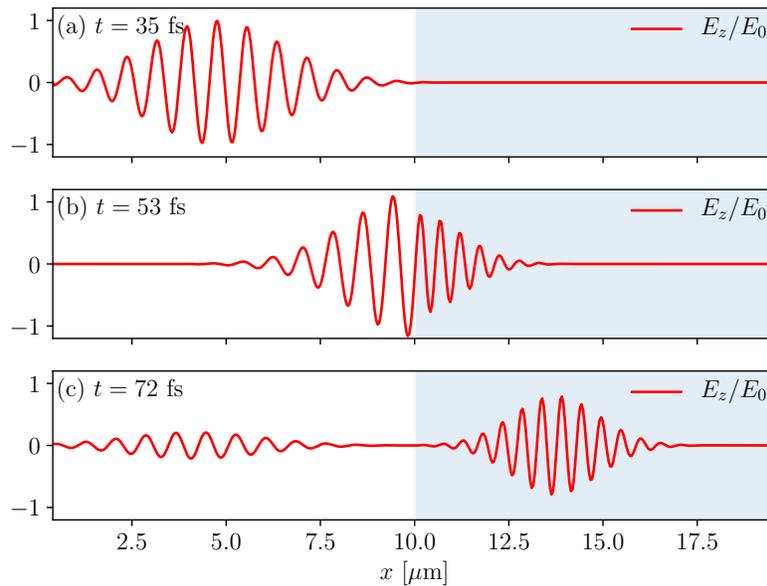


FIGURE 1.5 – Transmission et réflexion d’une impulsion laser du vide vers un diélectrique ayant un indice de réfraction $n = 1.5$. La zone bleue indique la présence du milieu diélectrique. La durée de l’impulsion est $\tau = 10$ fs et la longueur d’onde est $\lambda = 800$ nm.

PyPlasma 1.2: Milieu transparent

script complet : `pyplasma/examples/capsules/1.2_transparent_medium.py`

À partir d’ici, les scripts ne sont plus décrits en entier. Seuls les nouveaux éléments sont présentés.

Afin d’ajouter un milieu transparent à la dernière simulation de la propagation d’une impulsion laser et reproduire la figure 1.5, on commence par créer le matériau. On choisit un indice de réfraction de $n = 1.5$, puis une fréquence de résonance arbitraire [$\omega_0 = 2\pi c/(120 \text{ nm})$], mais éloignée de la fréquence du laser afin de minimiser son importance.

```
material = Material(index=1.5, resonance=120e-9)
```

Le matériau est ajouté à la simulation à partir de $10 \mu\text{m}$.

```
domain.add_material(material, boundaries={'xmin':10*um})
```

Puis, on lance la simulation :

```
domain.run(120*fs)
```

Théorie perturbative

On utilise la méthode des perturbations afin de trouver une solution pour la susceptibilité plus générale que sous l'approximation harmonique [12]. Plusieurs options sont possibles pour briser la forme parabolique du potentiel, l'approche la plus fréquente est d'ajouter un terme cubique pour un potentiel asymétrique ou un terme d'ordre 4 pour un potentiel symétrique. Si on décide d'ajouter un terme cubique au potentiel, cela implique un terme proportionnel à x^2 pour la force de rappel subie par l'électron (puisque la force est proportionnelle à la dérivée du potentiel), donc l'équation de mouvement devient

$$\ddot{x}(t) + \gamma_b \dot{x}(t) + \omega_0^2 x(t) + ax^2(t) = -\beta qE(t)/m, \quad (1.12)$$

avec le poids de la déformation du potentiel a . Le paramètre β est un paramètre qui peut prendre n'importe quelle valeur entre 0 et 1 et qui sera posé égal à 1 à la fin du calcul. On cherche une solution en série de puissances

$$x(t) = \beta x^{(1)}(t) + \beta^2 x^{(2)}(t) + \beta^3 x^{(3)}(t) + \dots, \quad (1.13)$$

que l'on insère dans (1.12). On obtient une équation dont les termes sont tous proportionnels à une puissance de β . On peut alors écrire une équation pour chacune des puissances possibles de β , soient

$$\beta^1 : \ddot{x}^{(1)}(t) + \gamma_b \dot{x}^{(1)}(t) + \omega_0^2 x^{(1)}(t) = -qE(t)/m, \quad (1.14a)$$

$$\beta^2 : \ddot{x}^{(2)}(t) + \gamma_b \dot{x}^{(2)}(t) + \omega_0^2 x^{(2)}(t) + a [x^{(1)}(t)]^2 = 0, \quad (1.14b)$$

$$\beta^3 : \ddot{x}^{(3)}(t) + \gamma_b \dot{x}^{(3)}(t) + \omega_0^2 x^{(3)}(t) + 2ax^{(1)}(t)x^{(2)}(t) = 0, \quad (1.14c)$$

⋮

La première équation, pour $x^{(1)}(t)$ est identique au cas linéaire et sa solution retombe sur le modèle de Lorentz. On insère ensuite cette solution dans la deuxième équation pour obtenir $x^{(2)}(t)$ et ainsi de suite pour les termes non-linéaires d'ordres supérieurs. La solution peut ensuite être traduite en termes de polarisations d'ordres supérieurs tel que

$$P(t) = P^{(1)}(t) + P^{(2)}(t) + P^{(3)}(t) + \dots \quad (1.15)$$

Deuxième ordre. Connaissant déjà la solution pour le premier ordre [voir l'équation (1.6)], on peut l'utiliser pour trouver la solution de deuxième ordre

$$x^{(2)}(t) = \frac{-aq^2 E_0^2}{m^2} \frac{1}{4} \left[\frac{e^{2i\omega t}}{D_+(2\omega)[D_+(\omega)]^2} + \frac{1}{D_+(\omega)D_-(\omega)} + c.c. \right], \quad (1.16)$$

où $D_{\pm}(\omega) = \omega_0^2 - \omega^2 \pm i\omega\gamma_b$. Tel que fait pour le premier ordre, la polarisation de deuxième ordre (qui est une propriété macroscopique) est obtenue en sommant les contributions de N dipôles de charge $-q$, tel que

$$P^{(2)}(t) = -Nqx^{(2)}(t), \quad (1.17a)$$

$$= \frac{Naq^3 E_0^2}{m^2} \frac{1}{4} \left[\frac{e^{2i\omega t}}{D_+(2\omega)[D_+(\omega)]^2} + \frac{1}{D_+(\omega)D_-(\omega)} + c.c. \right]. \quad (1.17b)$$

Dans la limite $\omega \ll \omega_0$, la susceptibilité de deuxième ordre s'approxime également avec une valeur constante et réelle, avec $P^{(2)}(t)$ se réduisant tel que

$$P^{(2)}(t) \sim \frac{Naq^3}{m^2\omega_0^6} E_0^2 \left[\frac{\cos(2\omega t) + 1}{2} \right], \quad (1.18a)$$

$$\equiv \epsilon_0 \chi^{(2)} E(t)^2, \quad (1.18b)$$

où $E(t)^2 = E_0^2 \cos^2(\omega t) = E_0^2 [\cos(2\omega t) + 1]/2$ et $\chi^{(2)} = Naq^3/(\epsilon_0 m^2 \omega_0^6)$.

En inspectant (1.18a), on apprend que la polarisation au deuxième ordre est la somme de deux contributions. Une première vient d'un terme n'oscillant pas et une seconde qui vient du terme qui oscille à 2ω . La contribution à 2ω est responsable du phénomène de *génération du deuxième harmonique* (SHG). Deux photons de fréquence ω sont absorbés et un seul est réémis à 2ω . Pour la contribution qui n'oscille pas, elle est responsable du phénomène de *rectification optique* [12]. On souhaite maintenant étudier comment se propage une impulsion laser dans un milieu comportant une non-linéarité d'ordre 2. Ajoutant la valeur $\chi^{(2)} = 10^{-10}$ m/V dans un calcul similaire à celui effectué pour obtenir la figure 1.5, on obtient maintenant la figure 1.6 avec $E_0 = 8.413 \cdot 10^9$ V/m.

Ces deux phénomènes peuvent être observés à la figure 1.6(c). D'abord, la génération du deuxième harmonique, car on voit bien des oscillations plus rapides apparaître, ainsi qu'un pic à la fréquence spatiale $2/\lambda$ [voir figure 1.6(d)]. Les pics des fréquences supérieures à $2/\lambda$ sont dues aux doublements de fréquence subséquents. Puis, la rectification optique se manifeste par un courant direct (DC), soit la tendance vers les valeurs négatives du champ électrique, particulièrement apparente à la figure 1.6(c).

Troisième ordre. Pour le troisième ordre, on peut continuer le développement précédent en insérant les solutions pour $x^{(1)}(t)$ et $x^{(2)}(t)$ dans (1.14c). Mais on passe directement au cas d'une déformation symétrique du potentiel, car quelque chose d'intéressant se produit dans ce cas.

Avec une déformation d'ordre 4 du potentiel, l'équation du mouvement de l'électron devient

$$\ddot{x}(t) + \gamma_b \dot{x}(t) + \omega_0^2 x(t) + bx(t)^3 = -\beta q E(t)/m, \quad (1.19)$$

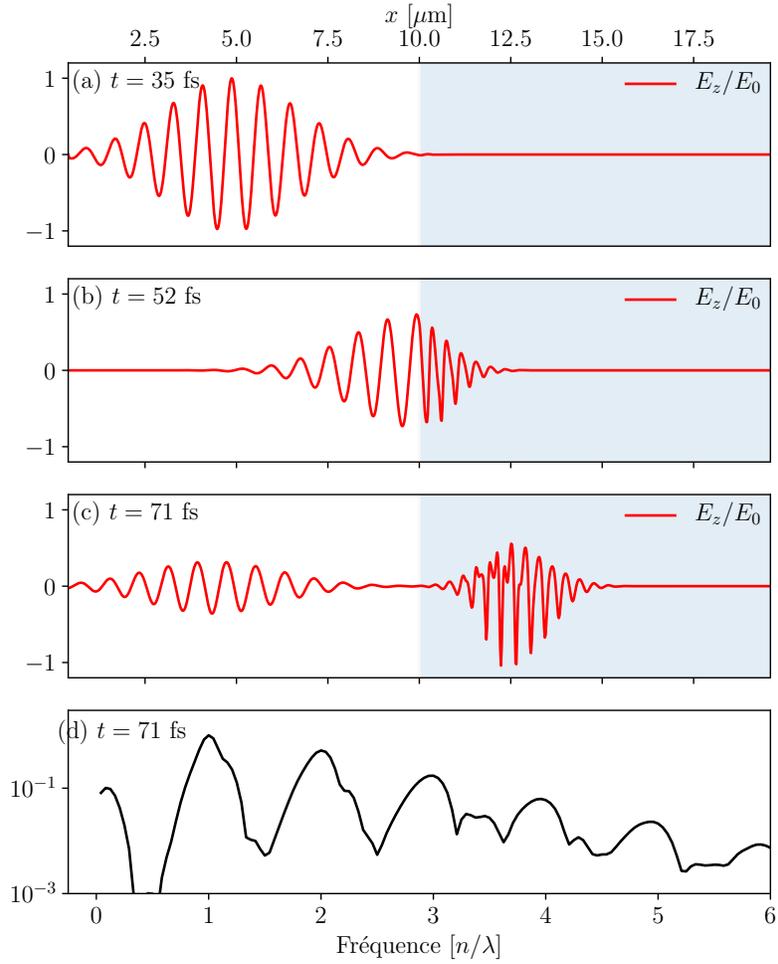


FIGURE 1.6 – Transmission et réflexion d’une impulsion laser ($E_0 = 3 \cdot 10^9$ V/m) du vide vers un diélectrique ayant un indice de réfraction $n = 2$ et une susceptibilité d’ordre 2 $\chi^{(2)} = 10^{-10}$ m/V. La zone bleue indique la présence du milieu diélectrique. La durée de l’impulsion est $\tau = 10$ fs et la longueur d’onde est $\lambda = 800$ nm. En (d) est montrée la norme de la transformée de Fourier en unités arbitraires de la région $x > 10 \mu\text{m}$ de la figure (c).

PyPlasma 1.3: Susceptibilité d'ordre 2

script complet : `pyplasma/examples/capsules/1.3_second_order_susceptibility.py`

Pour reproduire la figure 1.6, une susceptibilité de deuxième ordre est ajoutée à un matériau :

```
material = Material(index=2, chi2=1e-10, resonance=120e-9)
```

Notez que la nature non-linéaire de ce matériau implique que sa réponse optique dépend de l'amplitude du champ électrique. Il faut alors utiliser une valeur plus réaliste d'amplitude, tel que $E_0 = 3 \cdot 10^9$ V/m.

avec le poids de la déformation notée par b . On cherche toujours une solution de la forme (1.13) et on obtient le système d'équations

$$\beta^1 : \ddot{x}^{(1)}(t) + \gamma_b \dot{x}^{(1)}(t) + \omega_0^2 x^{(1)}(t) = -qE(t)/m, \quad (1.20a)$$

$$\beta^2 : \ddot{x}^{(2)}(t) + \gamma_b \dot{x}^{(2)}(t) + \omega_0^2 x^{(2)}(t) = 0, \quad (1.20b)$$

$$\beta^3 : \ddot{x}^{(3)}(t) + \gamma_b \dot{x}^{(3)}(t) + \omega_0^2 x^{(3)}(t) + b[x^{(1)}(t)]^3 = 0, \quad (1.20c)$$

⋮

Encore une fois, la première équation correspond au cas linéaire et retombe sur le modèle de Lorentz. La particularité du cas présent se trouve au deuxième ordre. On obtient l'équation (1.20b) qui est amortie, mais pas forcée. La solution ne peut alors être que $x^{(2)}(t) = 0$ et c'est le cas pour tous les ordres pairs. Il ne peut y avoir d'effets non-linéaires d'ordre pair si le potentiel atomique est symétrique par rapport à son centre.

On trouve la solution de troisième ordre de la même façon qu'avant, soit en insérant la solution de premier ordre dans l'équation (1.20c), ce qui mène à

$$x^{(3)}(t) = \frac{-bq^3 E_0^3}{m^3} \frac{1}{8} \left[\frac{e^{3i\omega t}}{D_+(3\omega)[D_+(\omega)]^3} + \frac{3e^{i\omega t}}{[D_+(\omega)]^2 D_-(\omega)} + c.c. \right]. \quad (1.21)$$

La polarisation de troisième ordre est alors

$$P^{(3)}(t) = -Nqx^{(3)}(t), \quad (1.22a)$$

$$= \frac{Nbq^4 E_0^3}{m^3} \frac{1}{8} \left[\frac{e^{3i\omega t}}{D_+(3\omega)[D_+(\omega)]^3} + \frac{3e^{i\omega t}}{[D_+(\omega)]^2 D_-(\omega)} + c.c. \right], \quad (1.22b)$$

que l'on approxime, dans la limite $\omega \ll \omega_0$, par

$$P^{(3)}(t) \sim \frac{Nbq^4}{m^3 \omega_0^8} E_0^3 \left[\frac{\cos(3\omega t) + 3 \cos(\omega t)}{4} \right], \quad (1.23a)$$

$$\equiv \epsilon_0 \chi^{(3)} E(t)^3, \quad (1.23b)$$

où $E(t)^3 = E_0^3 \cos(\omega t)^3 = E_0^3 [\cos(3\omega t) + 3 \cos(\omega t)]/4$ et $\chi^{(3)} = Nbq^4/(\epsilon_0 m^3 \omega_0^8)$. Le premier terme oscille à 3ω et est responsable de la *génération du troisième harmonique* (THG). Le second terme oscille à la même fréquence que le laser source, soit à ω . Ce terme est responsable de l'*effet Kerr*.

Effet Kerr. L'expression de la polarisation, toujours dans la limite $\omega \ll \omega_0$ et en ne considérant que les contributions linéaire $P^{(1)}(t)$ et de l'effet Kerr [deuxième terme du côté droit de (1.23a)] est

$$P(t) = \epsilon_0 \left(\chi^{(1)} + \frac{3}{4} \chi^{(3)} E_0^2 \right) E(t). \quad (1.24)$$

Utilisant la définition de l'indice de réfraction, avec $\chi = (\chi^{(1)} + \frac{3}{4} \chi^{(3)} E_0^2)$, on a

$$n = \sqrt{1 + \chi}, \quad (1.25a)$$

$$n = \sqrt{1 + \chi^{(1)} + \frac{3}{4} \chi^{(3)} E_0^2}, \quad (1.25b)$$

$$\approx \sqrt{1 + \chi^{(1)}} + \frac{3\chi^{(3)} E_0^2}{8\sqrt{1 + \chi^{(1)}}}, \quad (1.25c)$$

$$= n_0 + n_2 I, \quad (1.25d)$$

où on a gardé les deux premiers termes du développement en série de Taylor à la troisième ligne, l'indice de réfraction linéaire est $n_0 = \sqrt{1 + \chi^{(1)}}$, l'indice non linéaire de Kerr est

$$n_2 = \frac{3\chi^{(3)}}{4n_0^2 \epsilon_0 c}, \quad (1.26)$$

puis l'intensité est $I = n_0 \epsilon_0 c E_0^2 / 2$.

On peut alors interpréter l'effet Kerr comme une modification locale de l'indice de réfraction en fonction de l'intensité du laser. Puisque la contribution est positive, alors n augmente et le milieu agit comme une lentille convergente. Si la source lumineuse converge, son intensité locale augmente, puis l'effet Kerr s'intensifie à son tour et cette boucle de rétroaction entraîne l'auto-focalisation de la source lumineuse et ultimement, des phénomènes extrêmes quand l'intensité est maximale.

Ajoutant une susceptibilité d'ordre 3 dans le calcul de propagation d'une impulsion laser, on obtient cette fois la figure 1.7.

On peut observer la génération du troisième harmonique ainsi que l'effet Kerr à la figure 1.7(c). Les oscillations très rapides sont dues à la THG. Quant à l'effet Kerr, on ne peut observer d'auto-focalisation, car il faut simuler au moins deux dimensions spatiales afin d'observer ce phénomène. Toutefois, on peut voir très clairement une conséquence de l'effet Kerr qui

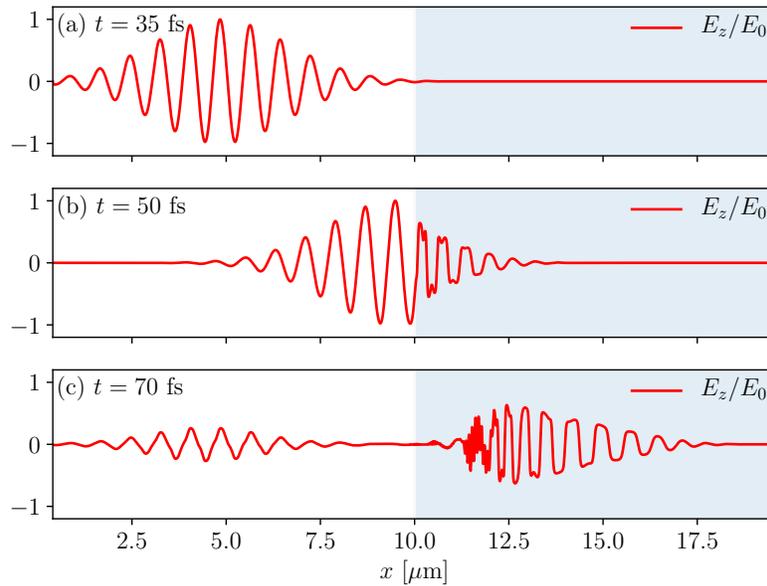


FIGURE 1.7 – Transmission et réflexion d’une impulsion laser ($E_0 = 5 \cdot 10^9$ V/m) du vide vers un diélectrique ayant un indice de réfraction $n = 1.33$ et une susceptibilité d’ordre 3 $\chi^{(3)} = 10^{-19}$ m²/V². La zone bleue indique la présence du milieu diélectrique. La durée de l’impulsion est $\tau = 10$ fs et la longueur d’onde est $\lambda = 800$ nm. Autour de $x \sim 11$ μm , on observe de l’instabilité numérique qui peut être contrôlée ou évitée en ajustant les paramètres de la simulation (discrétisation plus fine) ou en prenant en ajoutant de l’absorption pour les fréquences les plus élevées.

augmente la valeur de l’indice de réfraction quand l’intensité du laser est plus grande. Observant attentivement la forme de l’impulsion transmise, il semble que l’onde ait pris une forme plus carrée. Cela s’est produit, car aux pics d’intensité, l’indice de réfraction à l’interface est maximale, ce qui résulte en une plus grande réflectivité. Les sommets de l’impulsion sont alors coupés nets, alors que l’inverse se produit pour l’onde réfléchie qui semble plutôt triangulaire.

PyPlasma 1.4: Susceptibilité d’ordre 3

script complet : `pyplasma/examples/capsules/1.4_third_order_susceptibility.py`

Pour obtenir la figure 1.7, on ajoute une susceptibilité de troisième ordre :

```
material = Material(index=1.33, chi3=1e-19, resonance=120e-9)
```

1.4 Courants libres

1.4.1 Métaux et plasmas

Après les courants liés causés par les électrons de la bande de valence, un autre type de courant intra-bande est engendré par le mouvement des électrons de la bande de conduction. Ces électrons peuvent se déplacer aisément, on parle alors de *courants libres*. Ces courants sont responsables des propriétés électromagnétiques distinctes des métaux et des plasmas. De la même façon que la présence de courants liés a introduit une polarisation \vec{P} dans les équations de Maxwell, les courants libres ajoutent une nouvelle quantité à déterminer, la densité de courants libres \vec{J}_f .

Reprenant la représentation atomique très pratique qu'est le système masse-ressort, que doit-on y ajouter afin de décrire tous ces nouveaux comportements électromagnétiques? Il y a toujours la force de Coulomb et un amortissement. Quant à la force de rappel... il n'y en a plus. Finalement, il suffit d'enlever quelque chose au modèle, soit le ressort, afin de décrire les courants libres. L'équation du mouvement est alors identique à l'équation (1.5c), mais sans le terme de la force de rappel, soit

$$\ddot{x} + \gamma\dot{x} = -qE(t)/m. \quad (1.27)$$

Le courant peut être défini assez intuitivement. Il est proportionnel à la charge des électrons $-q$, à leur densité ρ et à leur vitesse \dot{x} . Le facteur d'amortissement γ pour les électrons libres est généralement un paramètre différent de celui utilisé pour les électrons liés γ_b . On a alors la définition $J_f = -q\rho\dot{x}$. Introduisant cette définition dans l'équation du mouvement, on a alors

$$\frac{dJ_f(t)}{dt} = -\gamma J_f(t) + \frac{q^2\rho}{m}E(t). \quad (1.28)$$

Cette équation différentielle décrit l'évolution temporelle des courants libres dans le contexte du *modèle de Drude*. Ce modèle est d'une grande importance, car il permet de décrire le comportement des métaux et des plasmas (la bande de conduction est fortement peuplée dans les deux cas) exposés à des champs électromagnétiques externes.

À la section 1.3.1, on a montré comment des courants liés pouvaient être interprétés comme une modification de la permittivité, ou de façon équivalente, en modifiant l'indice de réfraction. Il est possible de faire la même chose avec le modèle de Drude et les courants libres. D'abord on introduit un paramètre très pratique afin de rendre les prochaines équations plus limpides, la *fréquence de plasma*

$$\omega_p = \sqrt{\frac{q^2\rho}{\epsilon_0 m}}, \quad (1.29)$$

où ρ est la densité d'électrons dans la bande de conduction. On peut ensuite reprendre l'équation du mouvement de ces électrons (1.28) et la traduire dans l'espace de Fourier, tel que

$$\frac{dJ_f(t)}{dt} = -\gamma J_f(t) + \epsilon_0 \omega_p^2 E(t), \quad (1.30a)$$

$$-i\omega \tilde{J}_f(\omega) = -\gamma \tilde{J}_f(\omega) + \epsilon_0 \omega_p^2 \tilde{E}(\omega), \quad (1.30b)$$

où la propriété de la transformée de Fourier $\text{TF}\{d/dt\} = -i\omega$ a été utilisée. Par définition, les courants et champs dans l'espace de Fourier sont $\text{TF}\{J_f(t)\} = \tilde{J}_f(\omega)$ et $\text{TF}\{E(t)\} = \tilde{E}(\omega)$, respectivement. On réarrange ensuite les termes, tel que

$$\tilde{J}_f(\omega) = \frac{\epsilon_0 \omega_p^2}{\gamma - i\omega} \tilde{E}(\omega), \quad (1.31a)$$

$$= \frac{\epsilon_0 \omega_p^2 (\gamma + i\omega)}{\gamma^2 + \omega^2} \tilde{E}(\omega). \quad (1.31b)$$

On peut directement vérifier l'effet qu'a un tel courant en l'insérant dans les équations de Maxwell, plus particulièrement, le côté droit de l'équation (1.1d) dans l'espace de Fourier également. Ignorant les courants liés ($D = E$) et l'aspect vectoriel, l'expression devient simplement $-i\omega\epsilon_0 \tilde{E}(\omega) + \tilde{J}_f(\omega)$. En y insérant l'expression (1.31b), on obtient

$$-i\omega\epsilon_0 \tilde{E}(\omega) + \tilde{J}_f(\omega) = -i\omega\epsilon_0 \tilde{E}(\omega) + \frac{\epsilon_0 \omega_p^2 (\gamma + i\omega)}{\gamma^2 + \omega^2} \tilde{E}(\omega), \quad (1.32a)$$

$$= -i\omega\epsilon_0 \left[1 + \left(\frac{i\gamma}{\omega} - 1 \right) \frac{\omega_p^2}{\gamma^2 + \omega^2} \right] \tilde{E}(\omega), \quad (1.32b)$$

$$\equiv -i\omega\epsilon(\omega) \tilde{E}(\omega). \quad (1.32c)$$

La dernière expression implique que l'on peut interpréter les effets des courants libres comme une modification de la permittivité, telle que

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_0 \left[1 + \left(\frac{i\gamma}{\omega} - 1 \right) \frac{\omega_p^2}{\gamma^2 + \omega^2} \right]. \quad (1.33)$$

Encore une fois, la permittivité dépend de la fréquence angulaire ω . Les parties réelle et imaginaire sont

$$\text{Re}\{\epsilon(\omega)\} = \epsilon_0 \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\gamma^2 + \omega^2} \right), \quad (1.34a)$$

$$\text{Im}\{\epsilon(\omega)\} = \epsilon_0 \frac{\gamma}{\omega} \frac{\omega_p^2}{\gamma^2 + \omega^2}. \quad (1.34b)$$

Avec la définition de l'indice de réfraction $n = \epsilon^{1/2}$, on peut retrouver les parties réelle et imaginaire

$$\operatorname{Re}\{n(\omega)\} = \left[\frac{|\epsilon(\omega)| + \operatorname{Re}\{\epsilon(\omega)\}}{2} \right]^{1/2}, \quad (1.35a)$$

$$\operatorname{Im}\{n(\omega)\} = \left[\frac{|\epsilon(\omega)| - \operatorname{Re}\{\epsilon(\omega)\}}{2} \right]^{1/2}, \quad (1.35b)$$

où $|\epsilon(\omega)| = \sqrt{\operatorname{Re}\{\epsilon(\omega)\}^2 + \operatorname{Im}\{n(\omega)\}^2}$.

En inspectant l'équation (1.34a), on remarque que la partie réelle de la permittivité diminue en augmentant la fréquence de plasma (ou la densité d'électron dans la bande de conduction). À une fréquence de plasma précise, la partie réelle de la permittivité passe par zéro (à cette même valeur, la partie imaginaire de l'indice de réfraction dépasse sa partie réelle). La densité d'électrons, ou densité de plasma à laquelle cela se produit est la densité critique²

$$\rho_c = \left(\frac{\epsilon_0 m}{q^2} \right) (\gamma^2 + \omega^2). \quad (1.36)$$

Si on prend en compte les courants liés, il faut ajouter un facteur correspondant à l'indice de réfraction. À la valeur critique de la densité d'électrons, il se produit des changements qualitatifs importants dans la manière dont le plasma interagit avec une impulsion lumineuse. Le cas d'une propagation dans un plasma sous-critique est montré à la figure 1.8. Puis, le cas d'une propagation dans un plasma sur-critique est montré à la figure 1.9.

PyPlasma 1.5: Plasma sous-critique

script complet : `pyplasma/examples/capsules/1.5_sub_critical_plasma.py`

La figure 1.8 s'obtient en ajoutant un matériau ayant une certaine densité de plasma amorti. Afin d'utiliser le modèle de Drude, on fait :

```
material = Material(index=1.5,
                    drude_params={'damping':1e15, 'rho':3e26})
```

Dans le premier cas, celui d'un plasma sous-critique, l'impulsion lumineuse se propage dans le plasma, mais est graduellement atténuée et son amplitude diminue en se propageant. L'énergie de l'impulsion est alors absorbée par un mécanisme qui est décrit en détails à la section

2. Notez que la manière dont est définie la densité critique peut varier dans la littérature, malgré l'utilisation du même modèle de Drude. Dans [34] par exemple, l'amortissement γ est bien pris en compte dans le modèle de Drude, mais est laissé de côté dans la définition de la *densité critique*.

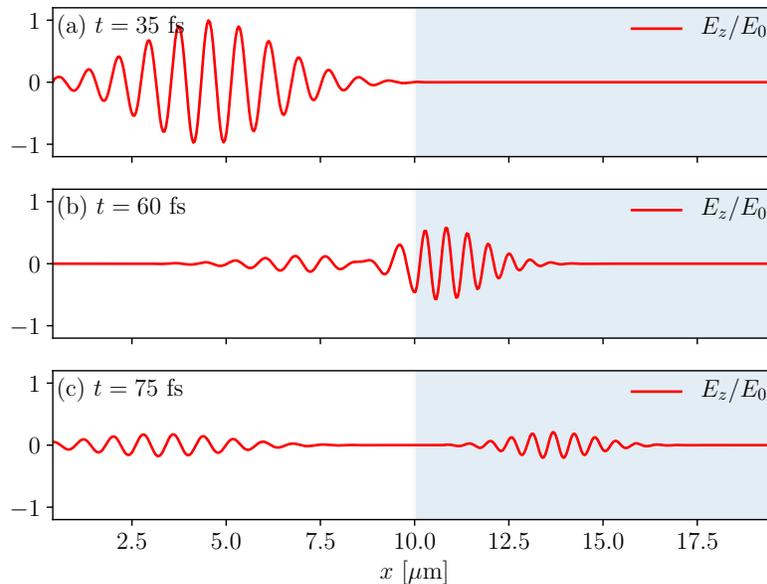


FIGURE 1.8 – Transmission et réflexion d’une impulsion laser du vide vers un milieu ayant un indice de réfraction $n = 1.5$, une densité de plasma de $\rho = 3 \cdot 10^{26} \text{ m}^{-3}$ et un taux d’amortissement du plasma de $\gamma = 10^{15} \text{ s}^{-1}$. Le plasma est alors sous la densité critique $\rho_c = 2 \cdot 10^{27} \text{ m}^{-3}$. La zone bleue indique la présence du milieu diélectrique. La durée de l’impulsion est $\tau = 10 \text{ fs}$ et la longueur d’onde est $\lambda = 800 \text{ nm}$.

PyPlasma 1.6: Plasma sur-critique

script complet : `pyplasma/examples/capsules/1.6_above_critical_plasma.py`

On obtient la figure 1.9 en augmentant la densité du plasma, tel que :

```
material = Material(index=1.5,
                   drude_params={'damping':1e15, 'rho':5e27})
```

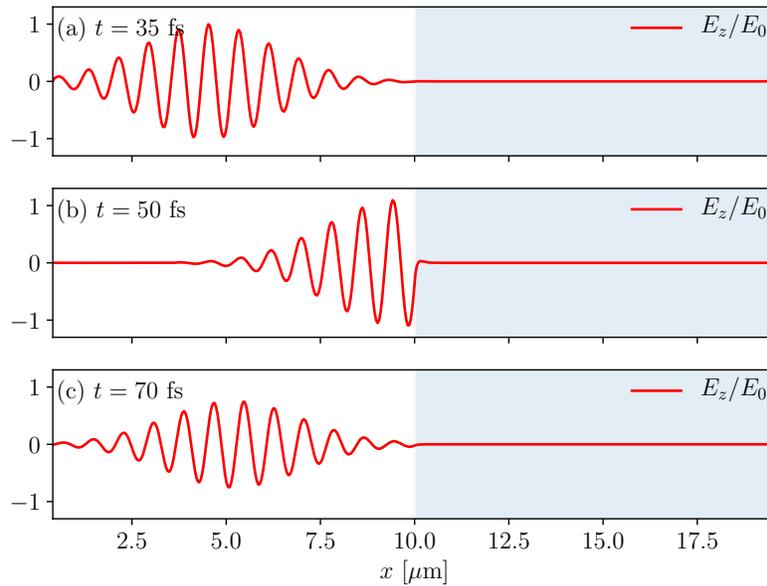


FIGURE 1.9 – Réflexion d’une impulsion laser sur un matériau ayant un indice de réfraction $n = 1.5$, une densité de plasma de $\rho = 5 \cdot 10^{27} \text{ m}^{-3}$ et un taux d’amortissement du plasma de $\gamma = 10^{15} \text{ s}^{-1}$. La densité du plasma est alors supérieure à la densité critique $\rho_c = 2 \cdot 10^{27} \text{ m}^{-3}$. La zone bleue indique la présence du milieu diélectrique. La durée de l’impulsion est $\tau = 10 \text{ fs}$ et la longueur d’onde est $\lambda = 800 \text{ nm}$.

1.4.2. Dans le second cas, celui d’un plasma sur-critique, la partie de l’impulsion transmise n’est qu’une onde évanescente, donc qui ne se propage pas et qui décroît exponentiellement très rapidement. Ainsi, presque toute l’impulsion est réfléchi. C’est le comportement typique d’un métal et c’est pourquoi ils sont tous très réfléchissants.

1.4.2 Échanges d’énergie entre rayonnement et plasma

Le comportement d’une onde électromagnétique qui interagit avec un plasma vient d’être abordé avec les figures 1.8 et 1.9. Toutefois, une analyse plus poussée permettrait de clarifier certains aspects du comportement des courants libres. Par exemple, il n’est pas évident à ce stade de comprendre comment le plasma peut absorber de l’énergie, tel que l’on a observé à la figure 1.8. Si le champ électromagnétique oscille et n’a pas de composante DC, il semble qu’il devrait accélérer les électrons de la bande de conduction autant dans une direction que dans l’autre, résultant en un gain nul d’énergie nette. On verra plus bas, entre autres choses, que ce n’est pas tout à fait le cas en présence d’un plasma amorti.

Reprenant de l’équation (1.28), avec un champ externe de la forme $E(t) = E_0 \cos(\omega t)$, la

solution à l'équilibre ($\gamma t \gg 1$) est

$$J_f(t) = \frac{q^2 E_0}{m(\gamma^2 + \omega^2)} [\omega \sin(\omega t) + \gamma \cos(\omega t)]. \quad (1.37)$$

La puissance instantanée transférée du champ électromagnétique aux charges libres est donnée par

$$\begin{aligned} \mathcal{P}(t) &= J_f(t) \cdot E(t), \\ &= \frac{\rho q^2 E_0^2}{m(\gamma^2 + \omega^2)} [\omega \sin(\omega t) \cos(\omega t) + \gamma \cos^2(\omega t)]. \end{aligned} \quad (1.38)$$

Chacun des deux termes est responsable d'un phénomène distinct, tous deux importants dans les chapitres suivants. Il s'agit de *l'énergie pondéromotrice* et de *l'effet Joule*, décrits ci-dessous.

Énergie pondéromotrice

Le premier terme de l'équation (1.38) représente l'énergie qu'un porteur de charge gagne durant la première moitié d'un cycle optique, avant de la reperdre durant la seconde moitié, résultant en aucun gain ni perte net. Il s'agit de *l'énergie pondéromotrice* \mathcal{E}_p . La valeur instantanée de cette énergie se calcule en intégrant le terme correspondant de l'équation (1.38), tel que

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_p(t) &= \int_0^t q^2 E_0^2 \frac{\omega \sin(\omega t') \cos(\omega t')}{m(\gamma^2 + \omega^2)} dt', \\ &= \frac{q^2 |E(t)|^2}{2m(\gamma^2 + \omega^2)}. \end{aligned} \quad (1.39)$$

L'expression ci-dessus omet un facteur ρ afin de ne représenter que l'énergie associée à un seul porteur de charge. En général, on utilise plutôt l'expression de l'énergie pondéromotrice moyenne sur un cycle optique complet

$$\mathcal{E}_p = \langle \mathcal{E}_p(t) \rangle = \frac{q^2 E_0^2}{4m(\gamma^2 + \omega^2)}, \quad (1.40)$$

qui se réduit à l'expression habituelle $\mathcal{E}_p = q^2 E_0^2 / 4m\omega^2$ dans la limite $\gamma \rightarrow 0$.

Effet Joule

Le dernier terme de l'équation (1.38) est associé à l'absorption par le porteur de charge de la puissance du champ électromagnétique qui résulte en un gain net d'énergie après chaque cycle optique. Le taux auquel un quanta de lumière est absorbé est obtenu en divisant le dernier terme de l'équation (1.38) par l'énergie d'un photon $\hbar\omega$, soit

$$\gamma_{\text{jh}}(t) = \frac{\gamma}{\hbar\omega} \frac{q^2 |E(t)|^2}{m(\gamma^2 + \omega^2)} = \frac{2\gamma}{\hbar\omega} \mathcal{E}_p(t). \quad (1.41)$$

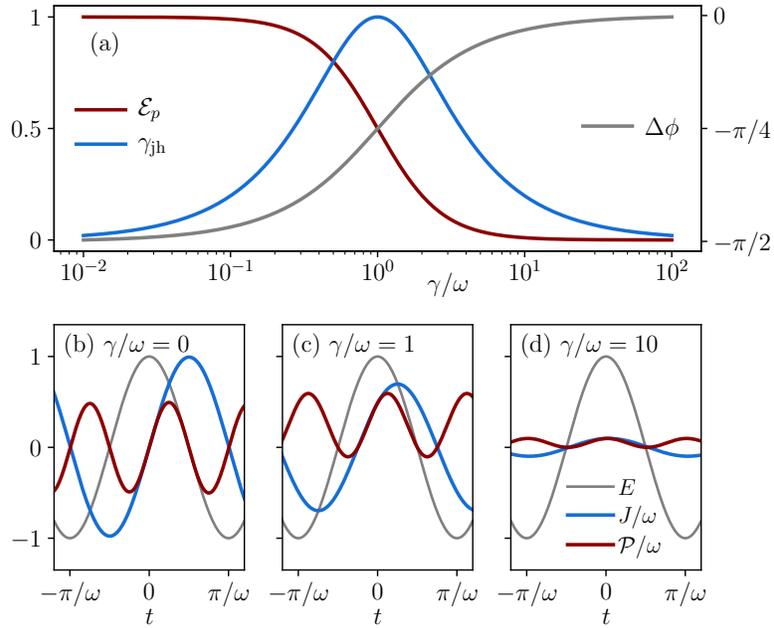


FIGURE 1.10 – (a) Énergie pondéromotrice \mathcal{E}_p , taux d’absorption γ_{jh} et déphasage $\Delta\phi$ en fonction du taux d’amortissement du plasma. L’énergie pondéromotrice est proportionnelle à l’amplitude des oscillations du transfert de puissance \mathcal{P} [voir (b)-(d)]. L’absorption γ_{jh} est proportionnelle à la valeur moyenne de \mathcal{P} [voir (b) et (d), où la puissance oscille autour de zéro et (c), où elle oscille autour d’une valeur positive].

Encore une fois, cette équation omet un facteur ρ afin d’exprimer le taux d’absorption par porteur de charge. Finalement, l’expression moyennée sur un cycle optique est

$$\gamma_{jh} = \langle \gamma_{jh}(t) \rangle = \frac{\gamma}{\hbar\omega} \frac{q^2 E_0^2}{2m(\gamma^2 + \omega^2)} = \frac{2\gamma}{\hbar\omega} \mathcal{E}_p. \quad (1.42)$$

À la figure 1.10, les comportements du champ électromagnétique et des courants libres du modèle de Drude sont illustrés pour différents taux d’amortissement γ . Pour un plasma qui n’est pas amorti [voir figure 1.10(b) avec $\gamma/\omega = 0$], le champ $E(t)$ et le courant $J_f(t)$ sont déphasés de $\Delta\phi = -\pi/2$. Ainsi, dès que le courant atteint un maximum, le champ inverse sa direction et commence à décélérer les électrons, puis à les accélérer en direction opposée, jusqu’à ce qu’ils atteignent leur énergie maximale à nouveau et ainsi de suite. Ce sont les conditions optimales afin que l’énergie pondéromotrice soit maximale, mais aucune énergie nette n’est absorbée au cours d’un cycle optique complet. On peut également s’en convaincre avec l’équation (1.42) qui confirme que l’effet Joule est nul s’il n’y a pas d’amortissement ($\gamma = 0$).

À l’autre extrême, quand l’amortissement est très grand [voir figure 1.10(d) avec $\gamma/\omega = 10$], le champ et le courant sont en phase. On pourrait penser que ce sont les conditions idéales

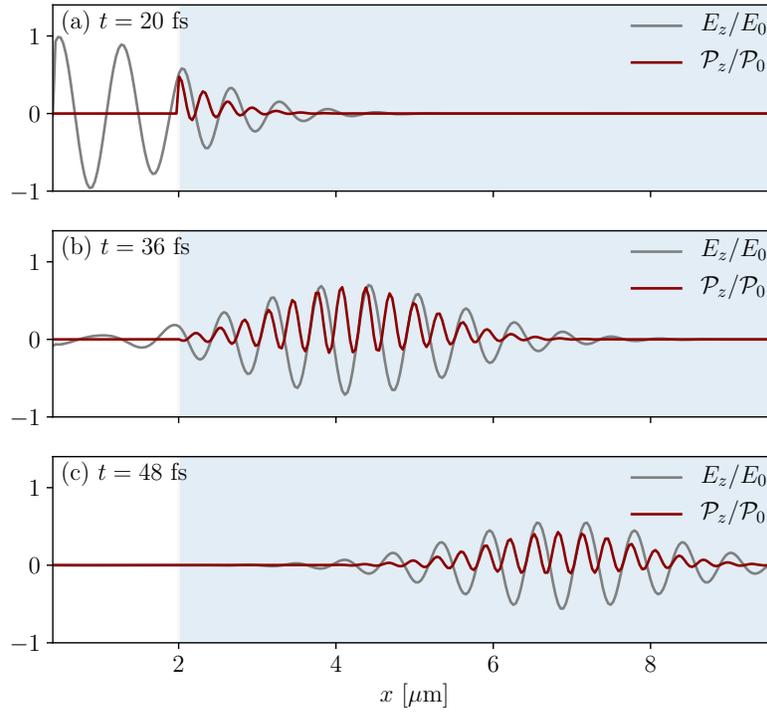


FIGURE 1.11 – Transfert de puissance entre le champ et les porteurs de charge lors d’une transmission d’une impulsion laser du vide vers un milieu ayant un indice de réfraction $n = 1.3$, une densité de plasma de $\rho = 5 \cdot 10^{27} \text{ m}^{-3}$ et un taux d’amortissement du plasma de $\gamma = 2 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$. La durée de l’impulsion est $\tau = 10 \text{ fs}$ et la longueur d’onde est $\lambda = 800 \text{ nm}$.

afin de maximiser l’absorption de l’énergie du champ vers le plasma. Toutefois, avec trop d’amortissement, les électrons n’arrivent simplement pas à accélérer ce qui revient à ne pas avoir de courants libres du tout. Si les électrons ne bougent pas, l’énergie pondéromotrice est nulle et l’effet Joule l’est également [voir l’équation (1.42)].

C’est dans le régime intermédiaire que l’effet Joule est maximal, à $\gamma = \omega$ exactement [voir figure 1.10(c)]. Ainsi, il faut une certaine quantité d’amortissement afin que le courant soit retardé par rapport au champ, réduisant leur déphasage et permettant un transfert d’énergie, mais il ne faut pas trop d’amortissement afin de permettre aux électrons de se déplacer. Finalement, la figure 1.11 montre le transfert de puissance $\mathcal{P}(t)$ quand se propage une impulsion lumineuse dans un plasma sous-critique et un amortissement de $\gamma/\omega = 0.4$. La puissance transférée a bien une tendance vers les valeurs positives. L’intégrale sur un cycle optique est alors non-nulle et le plasma absorbe bien de l’énergie.

PyPlasma 1.7: Transfert de puissance

script complet : `pyplasma/examples/capsules/1.7_power_transfer.py`

Pour obtenir les résultats de la figure 1.11, on inclue aussi la visualisation de la composante z de la puissance transférée :

```
w2 = Watcher('Powerz', vlim=(-2e20,6e20), c='k', out_step=3,
             loop=True, figsize=(9,3), keep_pml=False)
```

1.4.3 Masses effectives et masse réduite

Jusqu'ici, on a ignoré certains aspects qui concernent la masse des électrons m présente dans une grande partie des équations. Évidemment, un électron a une masse bien définie et constante de $m_0 \approx 9.109 \cdot 10^{-31}$ kg et toutes les équations précédentes peuvent être utilisées avec cette masse. Mais ces équations sont toutes le fruit d'approximations et il se trouve que l'on peut compenser pour certaines d'entre elles simplement en ajustant la valeur de cette masse, sans modifier les équations.

Dans le cadre du modèle de Drude et en l'absence d'amortissement, un électron libre se comporte de façon similaire à un électron dans le vide. Pourtant, dans un milieu solide, ces électrons sont dans la bande de conduction, ce qui n'est pas identique à un milieu vide. Le potentiel électromagnétique fait subir des forces aux électrons qui dépendent, entre autres choses, de la forme de la courbe de la distribution des niveaux d'énergie dans la bande de conduction. Afin de prendre ceci en compte dans les équations de ce chapitre, on aurait pu ajouter une force aux équations de mouvement [voir l'équation (1.5c) pour les électrons liés et (1.28) pour les électrons libres] et faire tout le chemin avec une complexité accrue. Mais une approche beaucoup plus simple et populaire est de remplacer la masse de l'électron par une *masse effective*. La masse effective d'un électron de la bande de conduction est m_e et est exprimée comme une fraction de la masse d'un électron libre m_0 . Par exemple, pour un matériau donné, on peut avoir une masse effective de $m_e = 0.5m_0$.

Un autre élément ignoré jusqu'à maintenant est la présence de trous dans la bande de valence. Ceci concerne plutôt les matériaux semi-conducteurs ou diélectriques dont les électrons sont tous dans la bande de valence en l'absence d'excitation et à température nulle. Bien-sûr, il s'agit d'une situation idéalisée et il y a toujours des électrons qui traversent la bande interdite. Pour ces électrons qui ne sont pas naturellement dans la bande de conduction, des trous sont laissés à leur origine, soit la bande de valence. Plus de détails sur ces pseudo-particules sont disponibles au début du prochain chapitre, mais pour l'instant, on retient que les trous se

comportent similairement à des électrons libres de charge opposée. Et de la même façon que l'on peut assigner une masse effective aux électrons reliée à la distribution des niveaux d'énergie dans la bande de conduction, on peut assigner une masse effective distincte aux trous reliée à la distribution des niveaux d'énergie de la bande de valence. On réfère à cette seconde masse effective par m_h .

Considérant un matériau semi-conducteur présentant une densité ρ d'électrons dans sa bande de conduction et une densité égale de trous dans sa bande de valence. On plonge ce matériau dans un champ électrique constant et on observe le comportement des porteurs de charge (électrons et trous). D'une part, les électrons sont accélérés dans la direction inverse à l'orientation du champ électrique, car ils ont une charge négative. Simultanément, les trous sont accélérés dans la direction opposée à celle des électrons, car leur charge est positive. La question est maintenant de savoir comment les équations du modèle de Drude sont affectées par la présence de cette deuxième population de porteurs de charge. En ignorant les interactions entre les électrons et les trous, on reprend de l'équation du mouvement des électrons (1.28) à laquelle on ajoute le terme correspondant au mouvement des trous, on a

$$\frac{dJ_f(t)}{dt} = -\gamma J_f(t) - \frac{(-q)^2 \rho}{m_e} E(t) - \frac{(+q)^2 \rho}{m_h} E(t), \quad (1.43a)$$

$$= -\gamma J_f(t) - \left(\frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h} \right) q^2 \rho E(t), \quad (1.43b)$$

$$= -\gamma J_f(t) - \frac{q^2 \rho}{m_r} E(t), \quad (1.43c)$$

où on a défini la *masse réduite*

$$m_r = \left(\frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_h} \right)^{-1}. \quad (1.44)$$

En comparant l'équation (1.28) avec l'équation 1.43c, on constate que l'ajout de trous est équivalent à une simple modification supplémentaire à la masse employée dans les équations du modèle de Drude. La masse réduite m_r est alors une autre masse effective qui permet de prendre en compte la présence simultanée d'électrons dans la bande de conduction et de trous dans la bande de valence. La masse réduite peut être calculée à partir des masses effectives m_e et m_h dues aux formes respectives des courbes de distributions des niveaux d'énergie des bandes de conduction et de valence.

Chapitre 2

Courants inter-bande

Une partie des développements de ce chapitre sont basés sur la publication originale (en révision) [28]. En particulier, les sections 2.3 à 2.6 portant sur la modélisation d'avalanches d'ionisations.

2.1 Ionisation

Si les courants intra-bande décrits au chapitre 1 impliquent les transitions énergétiques des électrons au sein de la bande de valence (courants liés) ou de la bande de conduction (courants libres), les *courants inter-bandes* abordés dans ce chapitre relatent des transitions d'une bande à l'autre. On s'intéresse principalement aux transitions des électrons de la bande de valence vers la bande de conduction, un processus mieux connu sous le nom d'*ionisation*.

Plus précisément, l'ionisation des milieux diélectriques (ou semi-conducteurs dans une certaine limite) est abordée plutôt que les milieux métalliques, car ces derniers ont une population intrinsèque importante d'électrons dans leur bande de conduction et sont bien moins affectés par les courants inter-bande. À l'inverse, les milieux diélectriques n'ont qu'une infime population d'électrons libres et sont sujets à des changements de comportement extrêmement importants s'ils sont irradiés avec une intensité suffisante pour faire traverser la bande interdite aux électrons. Cette population induite de porteurs de charge libres s'apparente à un plasma et sera souvent qualifié ainsi dans ce chapitre.

Avant d'aller plus loin dans la description des transitions de la bande de valence vers la bande de conduction, on peut régler le cas des transitions inverses. Lorsqu'un électron quitte la bande de valence, il laisse derrière lui ce qu'on appelle un *trou*. L'état quantique dans lequel l'électron se trouvait étant désormais disponible, un autre électron de la bande de valence peut prendre cette place et lui-même laisser un trou derrière lui. Cette transition peut

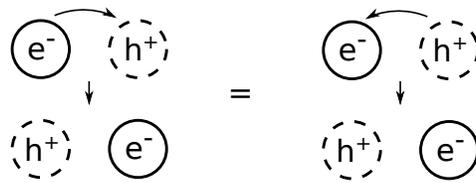


FIGURE 2.1 – Équivalence entre le déplacement d'un électron négatif ou d'un trou positif dans la direction inverse.

également être interprétée comme si l'état libre, ou le trou, s'était déplacé en sens inverse dans la bande de valence. Cette idée est illustrée à la figure 2.1. Ainsi, lorsqu'une ionisation se produit, un porteur de charge négative (électron) est produit dans la bande de conduction, mais il y a également un porteur de charge positive (trou) qui est produit dans la bande de valence, que l'on peut qualifier de quasi-particule. Sans être une particule réelle, un trou se comporte comme une charge positive et peut générer des courants libres dans la bande de valence en sens inverse de ceux des électrons de la bande de conduction. Une ionisation est alors associée à la création d'une *paire électron-trou*. Finalement, lorsqu'un électron de la bande de conduction rencontre un trou de la bande de valence, il peut *recombinaison* (un phénomène analogue à l'annihilation d'une paire électron-positron). Cette recombinaison est la transition inverse de l'ionisation. On peut maintenant revenir à l'ionisation.

Les deux premiers mécanismes abordés sont l'*ionisation multiphotonique* (MPI, pour *multi-photon ionisation*) et l'*ionisation par effet tunnel* (TI, pour *tunnel ionisation*) [26], qui sont, selon la théorie de Keldysh [52], deux comportements limites d'un unique phénomène plus général, soit l'*ionisation par rayonnement* (FI, pour *field ionisation*), que l'on décrit à la section 2.2. La théorie de Keldysh est présentée à la section 2.2.1. Une première contribution originale mineure est abordée à la section 2.2.2, soit une correction aux équations de Keldysh permettant de prendre en compte l'amortissement du plasma.

Un autre mécanisme, l'*ionisation par impact* (II, pour *impact ionisation*), est présenté à la section 2.3. Il y est montré comment l'ionisation par rayonnement combinée à l'ionisation par impact peut entraîner une *avalanche d'ionisations*, soit une croissance exponentielle de la densité de plasma pouvant ultimement causer des dommages structurels permanents à la zone irradiée.

Trois modèles permettant de décrire les taux de formation du plasma sont présentés, le modèle à taux simple (SRE) à la section 2.3.1, puis le modèle à taux multiples (MRE) à la section 2.3.2 et finalement, le modèle à taux décalés (DRE) à section 2.3.3. Ce dernier est la première contribution originale majeure [28] de cette thèse et tente de résoudre certains problèmes inhérents aux deux modèles précédents. En particulier, on tentera d'entrer dans une joute bien controversée en abordant une question concernant le phénomène d'avalanche

d'ionisations. En effet, depuis la prolifération des laser femtoseconde, de forts désaccords sont présents dans la littérature sur la possibilité de déclencher une telle avalanche sur une échelle temporelle sous-picoseconde. On y ajoutera notre grain de sel à la section 2.6.

2.2 Ionisation par rayonnement

Tel que discuté plus haut, les électrons de la bande de valence peuvent s'y prendre de diverses façons afin de traverser la bande interdite et atteindre la bande de conduction. La première est l'ionisation multiphotonique. Tel que son nom l'indique, il s'agit d'absorber plusieurs photons quasi-simultanément. Ils doivent être absorbés très rapidement, car après avoir absorbé un premier photon, l'électron se retrouvera dans la bande interdite si $\hbar\omega < \mathcal{E}_g$ et le ré-émettre quasi-instantanément. Le mot clé ici est *quasi*. Bien qu'il ne puisse pas rester dans la bande interdite, en théorie, il ne peut pas ré-émettre un photon absorbé instantanément. Si un autre photon est absorbé avant que l'électron n'ait eu le temps de retourner dans la bande de valence, il peut faire un deuxième pas vers la bande de conduction et ainsi de suite. Pour que le processus puisse se produire avec une probabilité significative, il doit y avoir une très grande densité de photons, autrement dit, une forte intensité lumineuse. Naturellement, plus le nombre de photons requis $k = \lceil \mathcal{E}_g/\hbar\omega \rceil$ (où $\lceil x \rceil$ est l'entier supérieur à x) est grand, plus l'intensité doit être grande. Ainsi, le taux d'ionisation multiphotonique est

$$\nu_{\text{mpi}} \propto I^k, \quad (2.1)$$

avec l'intensité I .

Un autre mécanisme entre dans la catégorie d'ionisation par rayonnement, soit l'ionisation par effet tunnel. Une façon intuitive d'aborder ce phénomène est de représenter la bande de valence comme un puits de potentiel dans lequel sont confinés les électrons de valence. Lorsqu'un atome ou une molécule est exposée à un champ électro-magnétique externe, ce puits de potentiel est déformé tel que représenté à la figure 2.2. À forte intensité ($I \gtrsim 10^{14}$ W/cm²), la déformation peut être si importante, que la largeur de la barrière entre l'intérieur et l'extérieur du puits de potentiel peut s'amincir au point qu'un électron peut la traverser par effet tunnel. Avec une intensité encore plus grande, cette largeur peut même devenir nulle et l'électron peut s'échapper classiquement avec un mécanisme d'ionisation distinct, par suppression de barrière [25]. L'ionisation par suppression de barrière ne sera pas abordée, car les intensités requises ($I \gtrsim 10^{15-16}$ W/cm²) pour ce mécanisme sont bien plus élevées que dans les régimes étudiés ici.

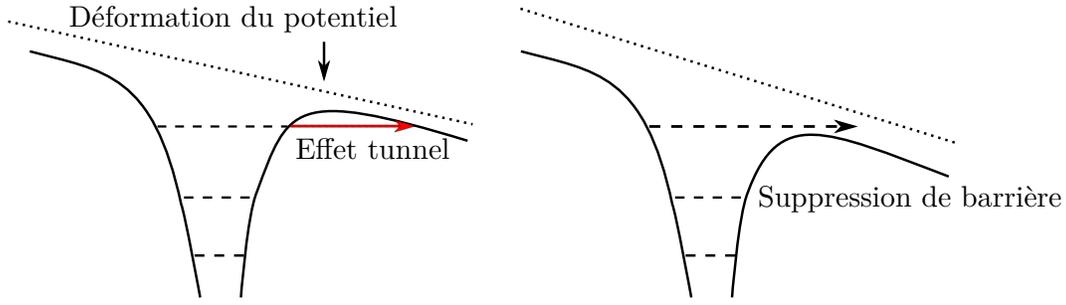


FIGURE 2.2 – Déformation du puits de potentiel atomique en présence d’un champ électromagnétique externe. À gauche, la barrière de potentiel entre l’état électronique supérieur et le continuum est graduellement amincie, facilitant la possibilité qu’un électron de valence s’échappe par effet tunnel. À droite, le champ est suffisamment intense pour que la barrière de potentiel ait complètement disparu et un électron du niveau supérieur peut s’échapper classiquement.

2.2.1 Équations de Keldysh

Pour l’instant, le problème est réduit au cas de l’ionisation d’un atome unique et la nature périodique des puits de potentiel et des bandes d’énergie est ignorée. L’adaptation des équations aux diélectriques est abordée à la fin de cette section.

Le modèle de Keldysh [52] a permis d’unifier les mécanismes d’ionisation multiphotonique et d’ionisation par effet tunnel sous une seule équation. Pour rappel, l’ionisation multiphotonique se produit lorsqu’un électron lié à un noyau atomique absorbe simultanément plus d’un photon d’énergie $\hbar\omega$ afin de se libérer du puits de potentiel de cet atome. L’ionisation par effet tunnel est possible quand le champ externe déforme suffisamment ce potentiel pour permettre à l’électron de traverser la barrière amincie.

La largeur de la barrière de potentiel auquel est soumis un électron lié à un noyau atomique est de l’ordre de $l \sim \mathcal{E}_i/qE$, avec l’énergie d’ionisation \mathcal{E}_i , la charge élémentaire q et le champ électrique E . Afin d’aborder les ordres de grandeur en question, on peut estimer la vitesse d’un électron traversant cette barrière en inversant l’équation de l’énergie cinétique, soit $v \sim \sqrt{2\mathcal{E}_i/m}$. On peut alors définir une fréquence d’ionisation par effet tunnel avec

$$\omega_t = v/l = qE/\sqrt{2m\mathcal{E}_i}. \quad (2.2)$$

La signification physique de cette fréquence est obscure. Un électron ne peut classiquement pas se retrouver dans la barrière de potentiel et on ne peut définir aussi simplement un temps réel que pourrait durer ce passage, ni son inverse, une fréquence. Un demi-siècle plus tard, ce temps est toujours sujet à débat dans la littérature [57].

Selon Keldysh, on peut tout de même s’attendre à ce que l’ionisation par effet tunnel devienne beaucoup plus difficile si la fréquence du champ externe ω est plus grande que ω_t , ne lais-

sant pas le «temps» à l'électron de s'échapper avant que la déformation du potentiel change d'orientation. Il définit alors le paramètre

$$\Gamma = \omega/\omega_t = \frac{\omega\sqrt{2m\mathcal{E}_i}}{qE}, \quad (2.3)$$

aujourd'hui appelé en son nom, le *paramètre de Keldysh*.

Il s'avère que, malgré sa signification physique initiale obscure, ce paramètre est toujours utilisé aujourd'hui pour déterminer facilement, en fonction du champ, si un atome ou matériau est ionisé principalement par mécanisme tunnel ou multiphotonique. Quand $\Gamma < 1$, la fréquence du champ est plus faible que ω_t et on est dans la limite régie par le mécanisme d'ionisation par effet tunnel. À l'inverse, si $\Gamma > 1$, alors la fréquence du champ externe est plus grande que ω_t et le mécanisme d'ionisation dominant est l'ionisation multiphotonique.

Une autre façon de représenter ce paramètre est de le réécrire en fonction de l'énergie pondéromotrice \mathcal{E}_p d'un électron libre dans un champ oscillant de forme $E(t) = E_0 \cos(\omega t)$ [voir l'équation (1.40)],

$$\Gamma = \sqrt{\mathcal{E}_i/2\mathcal{E}_p}. \quad (2.4)$$

Le paramètre de Keldysh est alors une fonction du rapport entre l'énergie d'ionisation et l'énergie pondéromotrice de l'électron libéré dans un champ oscillant. Cette définition a l'avantage de permettre une interprétation du paramètre plus facilement acceptable, quoique moins intuitive. Quand le champ est très intense, un électron qui passe d'un état lié à un état libre demande plus d'énergie, car son énergie pondéromotrice finale sera plus grande. L'ionisation multiphotonique devient alors plus difficile, car un plus grand nombre de photons est requis. L'ionisation par effet tunnel domine alors en champ intense.

Les solutions analytiques du modèle de Keldysh sont présentées dans cette section, pour les deux cas suivants : (i) ionisation d'un atome isolé (2.10a) et (ii) ionisation dans un diélectrique (2.13a).

Taux d'ionisation pour un atome unique

En mécanique quantique, la probabilité P de transition d'un état initial ψ_1 vers un état final ψ_2 se calcule en projetant l'état final sur l'état initial [23], autrement dit,

$$P_{\psi_1 \rightarrow \psi_2} = \left| \langle \psi_2 | \psi_1 \rangle \right|^2. \quad (2.5)$$

Dans le cas de l'ionisation, on cherche la probabilité de transition d'un électron lié à un atome dans son état fondamental, dont la fonction d'onde est

$$\psi_0(\vec{r}, t) = \psi_0(\vec{r}) \exp \left\{ \frac{i}{\hbar} \left(\mathcal{E}_i t - \frac{qE_0\sigma_0}{\omega} \sin \omega t \right) \right\}, \quad (2.6)$$

vers un état libre. Le paramètre σ_0 décrit le décalage du niveau d'énergie fondamental dû à la présence d'un champ électrique, soit l'effet Stark [92] qui agit sur l'énergie d'ionisation selon

$$\mathcal{E}_i(E) = \mathcal{E}_i - qE_0\sigma_0 - q^2E_0^2\alpha_0/2, \quad (2.7)$$

avec α_0 , le décalage de second ordre.

La forme de l'état libre vers lequel on transitionne est la particularité de l'article de Keldysh, car il a utilisé la fonction d'onde d'un électron libre oscillant dans un champ électrique alternatif. Les travaux précédents n'ont pas pris en compte l'énergie pondéromotrice supplémentaire que doit gagner l'électron libéré. La forme de la fonction d'onde est alors décrite par

$$\psi_p(\vec{r}, t) = \exp \left\{ \frac{i}{\hbar} \left[\left(\vec{p} + \frac{q\vec{E}}{\omega} \sin \omega t \right) \vec{r} - \int_0^t \frac{1}{2m_e} \left(\vec{p} + \frac{q\vec{E}}{\omega} \sin \omega \tau \right)^2 d\tau \right] \right\}, \quad (2.8)$$

avec la quantité de mouvement \vec{p} .

La méthode de calcul pour le taux de transitions ν_{fi} commence par la projection de l'état final ψ_p sur l'état initial ψ_0 en présence d'un champ électrique, avec une équation de la forme

$$\nu_{\text{fi}} \propto |\langle \psi_p | q\vec{E}\vec{r} | \psi_0 \rangle|^2. \quad (2.9)$$

Utilisant la théorie des perturbations et ne conservant que l'ordre inférieur obtenu, le taux d'ionisation est

$$\nu_{\text{fi}} = f_C \sqrt{\frac{2\mathcal{E}_i}{\hbar\omega}} \omega \left(\frac{\Gamma}{\sqrt{1+\Gamma^2}} \right)^{3/2} S \left(\Gamma, \frac{\tilde{\mathcal{E}}_i}{\hbar\omega} \right) \exp \left\{ -\frac{2\tilde{\mathcal{E}}_i}{\hbar\omega} \left[\sinh^{-1}\Gamma - \Gamma \frac{\sqrt{1+\Gamma^2}}{1+2\Gamma^2} \right] \right\}, \quad (2.10a)$$

$$S(\Gamma, x) = \sum_{n=0}^{\infty} \exp \left\{ -2([\![x]\!] - x + n) \left(\sinh^{-1}\Gamma - \frac{\Gamma}{\sqrt{1+\Gamma^2}} \right) \right\} \\ \times \Phi \left\{ \left[\frac{2\Gamma}{\sqrt{1+\Gamma^2}} ([\![x]\!] - x + n) \right]^{1/2} \right\}, \quad (2.10b)$$

en s^{-1} , où la fonction $\Phi(z) = \int_0^z e^{y^2-z^2} dy$ est l'intégrale de Dawson, $\tilde{\mathcal{E}}_i = \mathcal{E}_i + \mathcal{E}_p$ et la fonction $[\![x]\!]$ retourne le premier entier supérieur à x . Un facteur de correction $f_C = \mathcal{E}_i\Gamma/[\hbar\omega(1+\Gamma^2)^{1/2}]$ est également ajouté à (2.10a) afin de prendre en compte l'interaction de Coulomb dans l'état final de l'électron.

Taux d'ionisation pour un diélectrique

Dans un diélectrique, on calcule plutôt le transfert d'un électron de la bande de valence vers la bande de conduction, soit la création d'une paire électron-trou. La fonction d'onde de

l'électron est décrite par l'équation de Bloch [52]

$$\psi_{\vec{p}}^{c,v}(\vec{r}, t) = u_{\vec{p}(t)}^{c,v}(\vec{r}) \times \exp \left\{ \frac{i}{\hbar} \left[\vec{p}(t) \vec{r} - \int_0^t \mathcal{E}_{c,v}(\vec{p}(\tau)) d\tau \right] \right\}, \quad (2.11a)$$

$$\vec{p}(t) = \vec{p} + \frac{q\vec{E}}{\omega} \sin(\omega t), \quad (2.11b)$$

où les indices c et v indiquent les bandes de conduction et de valence, respectivement. Les fonctions $u_{\vec{p}(t)}^{c,v}(\vec{r})$ sont périodiques et ont la même symétrie de translation que la structure cristalline. Puis, $\mathcal{E}_{c,v}(\vec{p}(t))$ est l'énergie de l'électron.

Le résultat est un taux de transition entre la bande de valence et la bande de conduction en $s^{-1}m^{-3}$ d'une forme analogue au cas d'un atome isolé,

$$\nu_{fi} = \frac{4\omega}{9\pi} \left(\frac{m_r\omega}{\hbar\sqrt{x_1}} \right)^{3/2} \left(\frac{\pi}{2\mathcal{K}(x_2)} \right)^{1/2} \sum_{n=0}^{\infty} e^{-(\tilde{k}+n)\alpha} \Phi(x_3), \quad (2.12)$$

où

$$x_1 = \frac{\Gamma^2}{1 + \Gamma^2}; \quad x_2 = \frac{1}{1 + \Gamma^2}; \quad x_3 = \sqrt{\beta(2\iota + n)} \quad (2.13a)$$

$$\alpha = \pi \frac{\mathcal{K}(x_1) - \mathcal{F}(x_1)}{\mathcal{F}(x_2)}; \quad \beta = \frac{\pi^2}{2\mathcal{K}(x_2)\mathcal{F}(x_2)}; \quad \iota = \tilde{k} - \frac{\tilde{\mathcal{E}}_g}{\hbar\omega} \quad (2.13b)$$

$$\Gamma = \frac{\omega\sqrt{m_r\mathcal{E}_g}}{qE}; \quad \tilde{\mathcal{E}}_g = \frac{2}{\pi} \frac{\mathcal{F}(x_2)}{\sqrt{x_1}} \mathcal{E}_g; \quad \tilde{k} = \left\lceil \frac{\tilde{\mathcal{E}}_g}{\hbar\omega} \right\rceil. \quad (2.13c)$$

On note que le paramètre de Keldysh Γ diffère d'un facteur $1/\sqrt{2}$ par rapport au cas d'un atome isolé. De plus, la masse réduite d'une paire électron-trou m_r est utilisée. Les fonctions \mathcal{K} et \mathcal{F} sont les intégrales elliptiques complètes de premier et deuxième type.¹ Finalement, Φ est l'intégrale de Dawson.

À la figure 2.3 sont présentés les taux d'ionisation obtenus en fonction de l'intensité lumineuse pour différentes largeurs de bande interdites. À basse intensité ($\Gamma \gg 1$) l'ionisation par rayonnement est dans le régime multiphotonique et on trouve $\nu_{fi} \propto I^k$ où $k = \lceil \mathcal{E}_g/\hbar\omega \rceil$ est le nombre de photons requis afin de traverser la bande interdite. Dans un graphique aux axes logarithmiques, on obtient effectivement une droite de pente k . En s'approchant de $I \sim 10^{13}$ W/cm², on a $\Gamma \sim 1$ et on observe des sauts discrets dans les taux d'ionisation. Ces sauts correspondent aux sauts de la fonction $\tilde{k} = \lceil \tilde{\mathcal{E}}_g/\hbar\omega \rceil$ [voir l'équation (2.13c)]. Dans ce régime, l'effet Stark commence à se faire ressentir et la largeur de la bande interdite corrigée par cette déformation de la structure de bandes $\tilde{\mathcal{E}}_g$ augmente. Chaque saut discret correspond à l'augmentation du nombre de photons requis pour l'ionisation.

1. Les arguments des fonctions $\mathcal{K}(x)$ et $\mathcal{F}(x)$ dans l'article de Keldysh diffèrent d'une puissance 1/2, mais la définition de ces fonctions est différente et désuète. Les équations présentées ici sont ainsi équivalentes à celles de Keldysh.

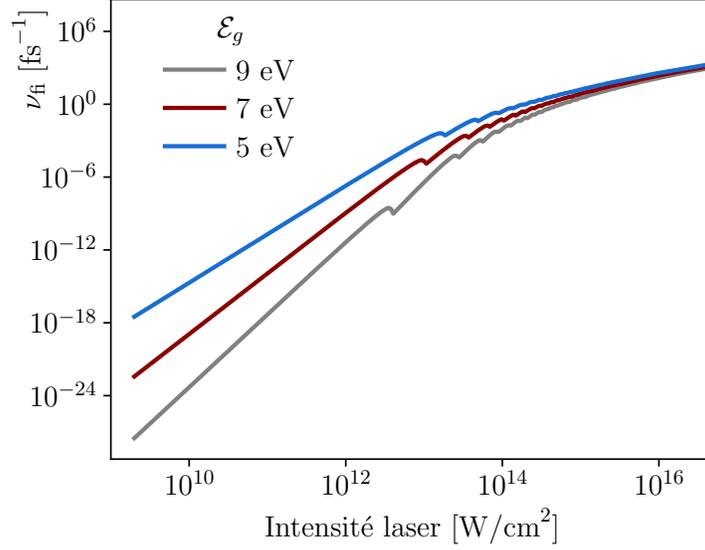


FIGURE 2.3 – Taux d’ionisation par rayonnement ν_{fi} selon la formule de Keldysh pour un milieu diélectrique [voir l’équation (2.12)]. L’indice de réfraction est $n = 1.5$, la densité atomique/moléculaire est $\rho_{\text{mol}} = 2 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}$ et la longueur d’onde du laser est $\lambda = 800 \text{ nm}$ ($\omega = 2\pi c/\lambda = 2.36 \text{ fs}^{-1}$).

Depuis la publication des travaux de Keldysh sur l’ionisation par rayonnement, plusieurs améliorations au modèle ont été proposées. Intégrer toutes ces modifications n’est pas réaliste, ni l’un des objectifs de cet ouvrage, mais l’une d’entre-elles semble particulièrement pertinente. Les durées d’impulsions auxquelles on s’intéresse sont particulièrement courtes. C’est pourquoi les effets de la *physique sous-cycle*, étudiés dans [111, 113, 58, 114] serait une avenue pertinente pour la suite de la présente étude.

2.2.2 Armortissement de l’effet Stark

Concernant la correction pour la largeur de la bande interdite qui vient d’être présentée dans la section précédente, il est temps d’ouvrir une parenthèse.

Il devrait être noté que l’équation (2.12) a été développée en utilisant la définition de l’énergie pondéromotrice $\mathcal{E}_p = q^2 E^2 / 4m\omega^2$. Tel que mentionné à la fin de la section 1.4.2, il s’agit du cas spécial où les électrons ne subissent pas d’amortissement ($\gamma = 0$). Afin de prendre en compte l’amortissement, on peut utiliser une version modifiée de la bande interdite efficace [voir $\tilde{\mathcal{E}}_g$ à l’équation (2.13c)], soit

$$\tilde{\mathcal{E}}_g'(\gamma) = \mathcal{E}_g(x_3 - 1) \frac{\omega^2}{\gamma^2 + \omega^2} + \mathcal{E}_g, \quad (2.14)$$

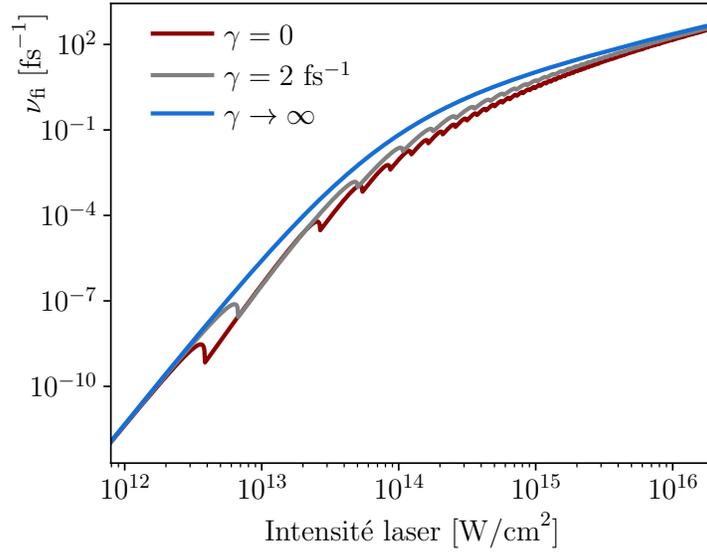


FIGURE 2.4 – Taux d’ionisation par rayonnement ν_{fi} pour un milieu diélectrique en prenant en compte la correction pour le taux d’amortissement du plasma de l’équation (2.14). Les paramètres sont les mêmes que ceux utilisés afin d’obtenir les résultats de la figure 2.3. La largeur de la bande interdite est $\mathcal{E}_g = 9$ eV.

obtenue par interpolation linéaire [voir l’équation (2.13a) pour la définition de x_3]. Plus précisément, cette expression est obtenue en multipliant la correction à la bande interdite par le rapport entre l’énergie pondéromotrice amortie [équation (1.40)] et l’énergie pondéromotrice non-amortie ($\gamma = 0$). Les taux d’ionisation par rayonnement en fonction de l’amortissement $\nu_{\text{fi}}(\gamma)$ calculés en utilisant (2.14) plutôt que $\tilde{\mathcal{E}}_g$ sont montrés à la figure 2.4.

À faible intensité, dans le régime d’ionisation multiphotonique, le décalage de l’énergie d’ionisation est petit ($x_3 \sim 1$) et l’effet de l’amortissement est alors minimal. À très forte intensité, dans le régime d’ionisation par effet tunnel, les taux d’ionisation ne sont toujours que très peu affectés par la présence d’amortissement, car dans cette limite, l’élargissement de la bande interdite n’est pas important dans les équations de Keldysh. C’est dans le régime intermédiaire, quand le paramètre de Keldysh est près de l’unité ($\Gamma \sim 1$) que l’amortissement devient important. Les taux d’ionisation peuvent être accrus jusqu’à un ordre de grandeur quand l’amortissement est grand. De plus, les sauts discrets observés dans la courbe de ν_{fi} qui se produisent à chaque fois que le nombre de quanta $\hbar\omega$ requis pour une ionisation augmente de 1 tendent à disparaître. Ces effets sont dus à la réduction de l’énergie pondéromotrice en la présence d’amortissement, ce qui minimise l’élargissement de la bande interdite. L’ionisation est alors facilitée et cela évite l’augmentation du nombre de photons à absorber ainsi que les sauts discrets conséquents.

Une étude plus approfondie et rigoureuse de l'importance de l'amortissement dans le modèle de Keldysh que celle présentée ci-dessus serait une avenue intéressante pour des travaux futurs.

On peut maintenant refermer la parenthèse.

2.3 Ionisation par impact

Un autre moyen employé par les électrons de valence afin de traverser la bande interdite est l'*ionisation par impact*. Ce mécanisme requiert qu'il y ait d'abord une population d'électrons dans la bande de conduction. Ces derniers pouvant absorber de l'énergie lumineuse beaucoup plus facilement que les électrons de valence, ils peuvent atteindre une énergie cinétique importante et entrer en collision avec des atomes ou molécules neutres et leur arracher un électron.

Dans le cas d'un diélectrique dont la population d'électrons dans la bande de conduction est initialement nulle ou négligeable, le processus de formation de plasma se produit alors en deux temps. Dans la première phase, l'ionisation par rayonnement va apporter les premiers électrons dans le bas de la bande de conduction. Ces derniers vont absorber de l'énergie *via* l'effet Joule (voir la section 1.4.2). Puis, la deuxième phase va s'initier une fois que l'énergie cinétique des électrons sera suffisante pour faire traverser la bande interdite à un autre électron. Dans cette phase, le taux d'ionisation par impact est proportionnel à la densité de plasma, ce qui entraîne une augmentation exponentielle de cette dernière. Cette croissance exponentielle est souvent qualifiée d'*avalanche d'ionisations*.

De nombreuses approches ont été proposées afin de simuler la formation de plasma induit par laser dans un milieu diélectrique [47, 15, 1, 34, 39, 83, 107, 14, 48, 20, 22, 21, 50, 44, 76, 67, 75, 45, 51, 93], pour en citer quelques-unes. Plus bas, on se concentre d'abord sur les modèles à taux simple [93] et à taux multiples [75], mieux adaptés aux simulations auxquelles on veut les intégrer.

2.3.1 Modèle à taux simple

Le *modèle à taux simple* (SRE, pour *single rate equation*) est une des descriptions les plus faciles à aborder afin de décrire la formation de plasma dans un diélectrique tout en prenant en compte les mécanismes d'ionisation par rayonnement et par impact [93]. Le taux de formation de plasma est donné par

$$\frac{d\rho}{dt} = \underbrace{\nu_{fi}\rho_n}_{\text{FI}} + \underbrace{\alpha\rho I\rho_n}_{\text{II}} - \underbrace{\gamma_r\rho}_{\text{RE}}, \quad (2.15)$$

où ρ représente la densité de porteurs de charge. Les deux premiers termes du côté droit sont associés à l'ionisation par rayonnement (FI) et à l'ionisation par impact (II), respectivement. Ils sont pondérés par la densité d'atomes ou de molécules neutres $\rho_n = (\rho_{\text{mol}} - \rho)$ (si on ne prend en compte qu'un seul niveau d'ionisation). Ici, ρ_{mol} est la densité moléculaire (ou d'atomes), α est le coefficient de taux d'impact et $I = c\epsilon_0 n_0 E^2 / 2$ est l'intensité du laser moyennée sur un cycle optique, avec l'indice de réfraction linéaire n_0 . Le dernier terme représente la recombinaison (RE) des paires électrons-trous à un taux γ_r .

À la figure 2.5, la transmission d'une impulsion laser gaussienne dans un diélectrique et la formation de plasma est simulée en utilisant le modèle SRE afin d'obtenir les taux d'ionisation. Au début de l'interaction, la formation de plasma est principalement due à l'ionisation par rayonnement [voir les figures 2.5(a) et (b), où $\rho_{\text{fi}} > \rho_{\text{ii}}$]. Puis, quand la densité de plasma est suffisamment grande afin d'entraîner une avalanche d'ionisations par impact, ce dernier mécanisme devient la principale source de plasma [voir la figure 2.5(c), où $\rho_{\text{ii}} > \rho_{\text{fi}}$]. La formation de plasma dans un diélectrique est alors un processus en deux étapes.

PyPlasma 2.1: Modèle à taux simple (SRE)

script complet : `pyplasma/examples/capsules/2.1_single_rate_equation.py`

Pour reproduire la figure 2.5, on ajoute un matériau auquel on spécifie les paramètres reliés à l'ionisation, tel que :

```
material = Material(index=1.3, drude_params={'damping':1e15},
                   ionization_params={'rate_equation':'sre', 'bandgap':9*eV,
                                       'density':2e28, 'alpha_sre':0.0004})
```

Cette fois, on a pas spécifié de densité de plasma initiale dans les paramètres du modèle de Drude. Le plasma provient alors uniquement de l'ionisation.

Le modèle SRE a d'abord été développé à partir d'observations empiriques. La relation linéaire entre le taux d'ionisations par impact et l'intensité du laser peut être justifiée par la linéarité entre le taux d'absorption des porteurs de charge et l'intensité laser [voir l'équation (1.42), où $\gamma_{\text{jh}} \propto E^2$]. De même, le taux auquel les électrons et les trous absorbent de l'énergie via l'effet Joule, ainsi que le taux auquel ils reperdent cette énergie via l'ionisation par impact sont tous deux proportionnels à l'intensité. Toutefois, la relation linéaire entre l'ionisation par impact et la densité ρ [voir l'équation (2.15)] impliquent que tous les porteurs de charge peuvent contribuer à l'ionisation par impact, peu importe leur énergie. En réalité, un porteur de charge doit accumuler une certaine énergie minimale \mathcal{E}_c avant de pouvoir causer une collision avec un électron de valence qui lui fera traverser la bande interdite et atteindre la bande

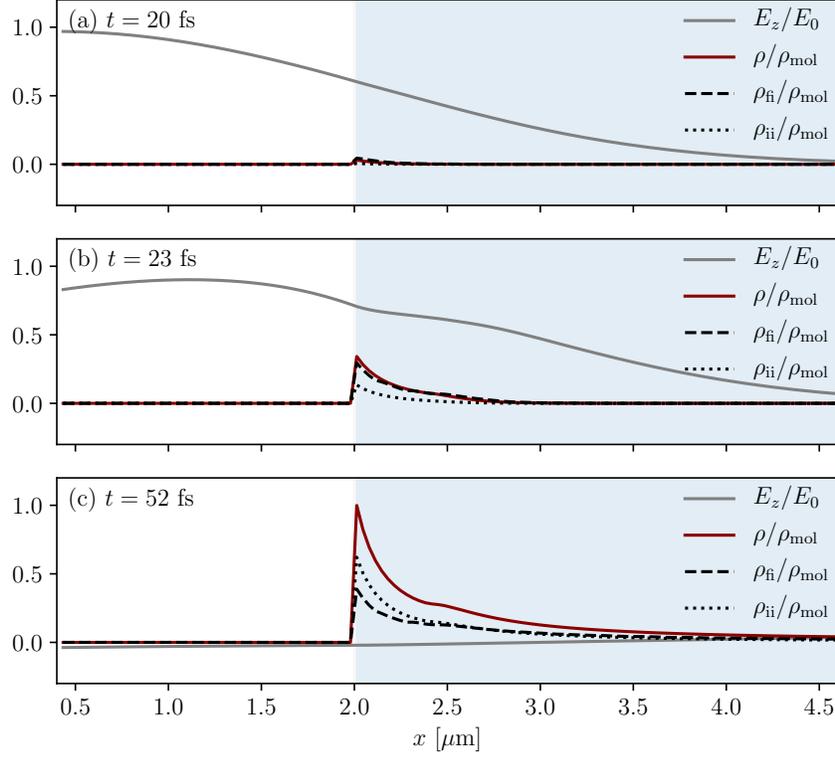


FIGURE 2.5 – Évolution de la densité du plasma ρ à la surface d'un matériau diélectrique irradié par une impulsion laser gaussienne (seule l'enveloppe est prise en compte). La densité du plasma est obtenue avec le modèle SRE [voir l'équation (2.15)]. En (b), on voit que le plasma provient d'abord principalement de l'ionisation par rayonnement ($\rho_{fi} > \rho_{ii}$). Puis, en (c), il est montré que l'ionisation par impact a surpassé l'ionisation par rayonnement ($\rho_{ii} > \rho_{fi}$). Les paramètres sont $n = 1.3$, $\gamma = 10^{15} \text{ s}^{-1}$, $\mathcal{E}_g = 9 \text{ eV}$, $\rho_{\text{mol}} = 2 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}$, $\alpha = 4 \text{ cm}^2/\text{J}$, $\lambda = 800 \text{ nm}$, $\tau = 10 \text{ fs}$, $F = 2 \text{ J}/\text{cm}^2$.

de conduction. Il y a alors une sur-estimation du taux d'ionisation par impact, particulièrement à faible intensité. Afin de respecter la conservation d'énergie, ainsi que la conservation de la quantité de mouvement (dans l'approximation d'un modèle à bandes paraboliques), cette *énergie critique* requise afin de permettre une ionisation par impact est donnée par [51]

$$\mathcal{E}_c = \left(1 + \frac{m_r}{m_h}\right) (\mathcal{E}_g + \mathcal{E}_p), \quad (2.16)$$

où m_r est la masse réduite d'une paire électron-trou, m_h est la masse effective d'un trou dans la bande de valence, \mathcal{E}_g est la largeur de la bande interdite et \mathcal{E}_p est l'énergie pondéromotrice [voir l'équation (1.40)].

La différence principale entre SRE et les approches plus sophistiquées repose dans la relation entre le taux d'ionisation par impact et la densité de plasma ρ . Cette relation devrait prendre

en compte le gain d'énergie graduel des porteurs de charge et respecter la nécessité qu'ils atteignent l'énergie critique \mathcal{E}_c avant de contribuer au taux d'ionisation par impact. Les deux prochains modèles présentés, MRE (section 2.3.2) et DRE (section 2.3.3), vont tenter de régler ce problème, chacun à leur manière.

2.3.2 Modèle à taux multiples

Afin d'affiner la compréhension du processus de formation de plasma dans un diélectrique, Kaiser *et al.* [51] ont développé un modèle prenant en compte une large variété d'interactions entre le rayonnement, les porteurs de charge et les phonons. Ce modèle décrit d'abord comment l'ionisation par rayonnement accumule des électrons dans un même niveau d'énergie au bas de la bande de conduction, créant ainsi un pic dans la distribution d'énergie à $\mathcal{E} = \mathcal{E}_0$. Lorsque ces électrons commencent à absorber des photons, un nouveau pic apparaît à $\mathcal{E} = \mathcal{E}_0 + \hbar\omega$, puis un autre à $\mathcal{E} = \mathcal{E}_0 + 2\hbar\omega$, et ainsi de suite. Graduellement, ces pics vont commencer à s'élargir et s'aplanir à cause des collisions et de la thermalisation, jusqu'à ce que la distribution d'énergie revienne à une distribution qui est à l'équilibre (distribution de Fermi-Dirac). En connaissant la distribution d'énergie tout au long de l'interaction avec la source lumineuse, le nombre de porteurs de charge qui ont une énergie cinétique égale ou supérieure à l'énergie critique \mathcal{E}_c [voir l'équation (2.16)] et qui peuvent contribuer à l'ionisation par impact est connu. Le taux d'ionisation par impact peut alors être ajusté en fonction de cette population réduite (porteurs de charge ayant $\mathcal{E} > \mathcal{E}_c$), plutôt que d'utiliser la population entière, comme il est fait dans le modèle à taux simple.

Le désavantage de l'approche de Kaiser *et al.*'s [51] est le nombre important d'équations différentielles à résoudre (quelques centaines dans le cas de la silice SiO_2).² Afin de trouver un compromis entre la simplicité (SRE) et la rigueur (Kaiser *et al.* [51]), Rethfeld *et al.* [75] ont développé le *modèle à taux multiples* (MRE) en laissant de côté la thermalisation de la distribution d'énergie. En conséquence, les pics initialement observés dans cette distribution du modèle de Kaiser sont préservés. Ceci permet de discrétiser la distribution en $k = \lceil \mathcal{E}_c / \hbar\omega \rceil$ niveaux d'énergie (plus un pour le niveau 0), chacun séparé par des incréments $\Delta\mathcal{E} = \hbar\omega$. Une équation d'évolution de la population est alors résolue pour chaque niveau d'énergie afin de suivre la distribution totale. Pour les électrons de la bande de conduction, ces équations

2. Malgré sa complexité qui rend le modèle cinétique de Kaiser *et al.* pratiquement impossible à utiliser pour des simulations tridimensionnelles, les travaux ont été poursuivis pour des simulations sans dimensions spatiales. Les résultats que l'on peut obtenir avec cette approche sont très détaillés et peuvent guider et inspirer les développements de modèles plus simples et légers [15, 1, 14, 85, 13].

sont

$$\frac{d\rho_0}{dt} = \nu_{fi}\rho_n - \gamma_{jh}^e\rho_0 + 2\gamma_n^e\rho_k + \gamma_n^h\rho_k^h - \gamma_r\rho_0, \quad (2.17a)$$

$$\begin{aligned} & \vdots \\ \frac{d\rho_j}{dt} &= \gamma_{jh}^e(\rho_{j-1} - \rho_j) - \gamma_r\rho_j \quad ; \quad 1 \leq j < k, \quad (2.17b) \\ & \vdots \end{aligned}$$

$$\frac{d\rho_k}{dt} = \gamma_{jh}^e\rho_{k-1} - \gamma_n^e\rho_k - \gamma_r\rho_k, \quad (2.17c)$$

$$\rho = \sum_{j=0}^k \rho_j. \quad (2.17d)$$

La population du niveau minimal ρ_0 (au bas de la bande de conduction) est d'abord alimenté par l'ionisation par rayonnement *via* le premier terme du côté droit de l'équation (2.17a). Le terme suivant représente les électrons retirés de ce niveau d'énergie à mesure qu'ils absorbent des photons à un taux γ_{jh}^e . À chaque fois qu'un électron est retiré d'un niveau $(j - 1)$ après avoir absorbé un photon, il est simultanément ajouté au niveau j , tel que décrit par l'équation (2.17b). Après k absorptions subséquentes, les électrons atteignent le niveau k avec une énergie d'au moins \mathcal{E}_c . À ce niveau, l'absorption est artificiellement arrêtée afin de limiter le nombre d'équations. À partir du moment qu'un électron atteint ce dernier niveau, il peut collisionner avec des atomes ou molécules neutres et causer une ionisation par impact à un taux γ_n^e . Lorsque cela se produit, l'électron perd ensuite son énergie cinétique et retombe au niveau le plus bas, tout en apportant un second électron de la bande de valence à la bande de conduction [voir le troisième terme de l'équation (2.17a)]. La recombinaison à un taux γ_r est également prise en compte pour chaque niveau d'énergie.

Le modèle à taux multiples original de Rethfeld *et al.* [75] a été modifié ici afin de prendre en compte les ionisations par impact qui peuvent également être causées par les trous de la bande de valence. De même que les électrons de la bande de conduction, ceux-ci peuvent aussi être accélérés et transférer de l'énergie dans des collisions avec des atomes ou molécules neutres. Afin de simplifier l'approche, les électrons et les trous utilisent les mêmes règles de conservation d'énergie et de quantité de mouvement. Leur unique différence est alors leurs masses effectives respectives. De cette façon, on peut aisément retomber sur le modèle original avec le cas spécial où les deux masses sont identiques $m_e = m_h$. Le terme $\gamma_n^h\rho_k^h$ a été ajouté à l'équation (2.17a) avec le taux de collisions entre les trous et les atomes/molécules neutres γ_n^h . La population de trous dans le niveau d'énergie k est ρ_k^h . Cette dernière est calculée avec un second ensemble de $k + 1$ équations qui décrivent la distribution d'énergie des trous de la bande de valence. Ce second ensemble d'équations est similaire aux équations (2.17), mais avec ρ_j^h , γ_n^h et γ_{jh}^h au lieu de ρ_j , γ_n^e et γ_{jh}^e , respectivement. Dans le cas spécial $m_e = m_h$, les deux ensembles de $k + 1$ équations sont équivalents et un seul peut être résolu avec $\gamma_n^h = \gamma_n^e$,

$$\gamma_{jh}^h = \gamma_{jh}^e \text{ et } \rho_j^h = \rho_j.$$

En sommant les équations (2.17), on obtient le taux de formation de plasma global

$$\frac{d\rho}{dt} = \nu_{fi}\rho_n + \sum_{s=e,h} \gamma_n^s \rho_k^s - \gamma_r \rho, \quad (2.18)$$

où $s = \{e, h\}$ indique une quantité propre aux électrons ou aux trous, respectivement. Le taux de collisions entre les atomes ou molécules neutres et les porteurs de charge est indiqué par γ_n^s [voir l'équation (2.26)]. Les équations (2.18) (MRE) et (2.15) (SRE) sont alors identiques, à l'exception du second terme, associé à l'ionisation par impact. Pour le modèle MRE, les taux d'ionisation par impact est proportionnel aux populations des niveaux supérieurs ρ_k^e et ρ_k^h . En comparaison, le taux d'ionisation par impact du modèle SRE est proportionnel à la population totale des porteurs de charge. Les résultats d'une simulation de la formation de plasma à la surface d'un diélectrique irradiée d'une impulsion laser sont montrés à la figure 2.6.

PyPlasma 2.2: Modèle à taux multiples (MRE)

script complet : `pyplasma/examples/capsules/2.2_multiple_rate_equations.py`

Les résultats de la figure 2.6 sont obtenus en utilisant cette fois le modèle MRE :

```
material = Material(index=1.3, drude_params={'damping':2e15},
                    ionization_params={'rate_equation':'mre', 'bandgap':9*eV,
                                       'density':2e28, 'cross_section':1e-19})
```

Puisque les niveaux d'énergie supérieurs ne sont peuplés qu'après k absorptions subséquentes, l'ionisation par impact est effectivement décalée par rapport à l'ionisation par rayonnement. Ce décalage temporel est approximativement

$$t_{\text{MRE}} = \left[(\sqrt[k]{2} - 1) \gamma_{jh}^e \right]^{-1} \rightarrow \frac{1}{\gamma_{jh}^e} \frac{k}{\ln 2} \text{ pour } k \gg 1, \quad (2.19)$$

si on ne prend en compte que les ionisations par impact dues aux électrons de la bande de conduction [76]. Afin de prendre en compte les trous, on peut définir un second décalage temporel en substituant γ_{jh}^e dans l'équation (2.19) par γ_{jh}^h .

Rethfeld [75] a conclu que pour une irradiation par une impulsion laser ayant une durée plus courte que t_{MRE} , l'ionisation par impact est négligeable par rapport à l'ionisation par rayonnement, car les porteurs de charge n'ont pas suffisamment de temps pour absorber l'énergie requise \mathcal{E}_c avant la fin de l'irradiation. Toutefois, l'absorption due à l'effet Joule

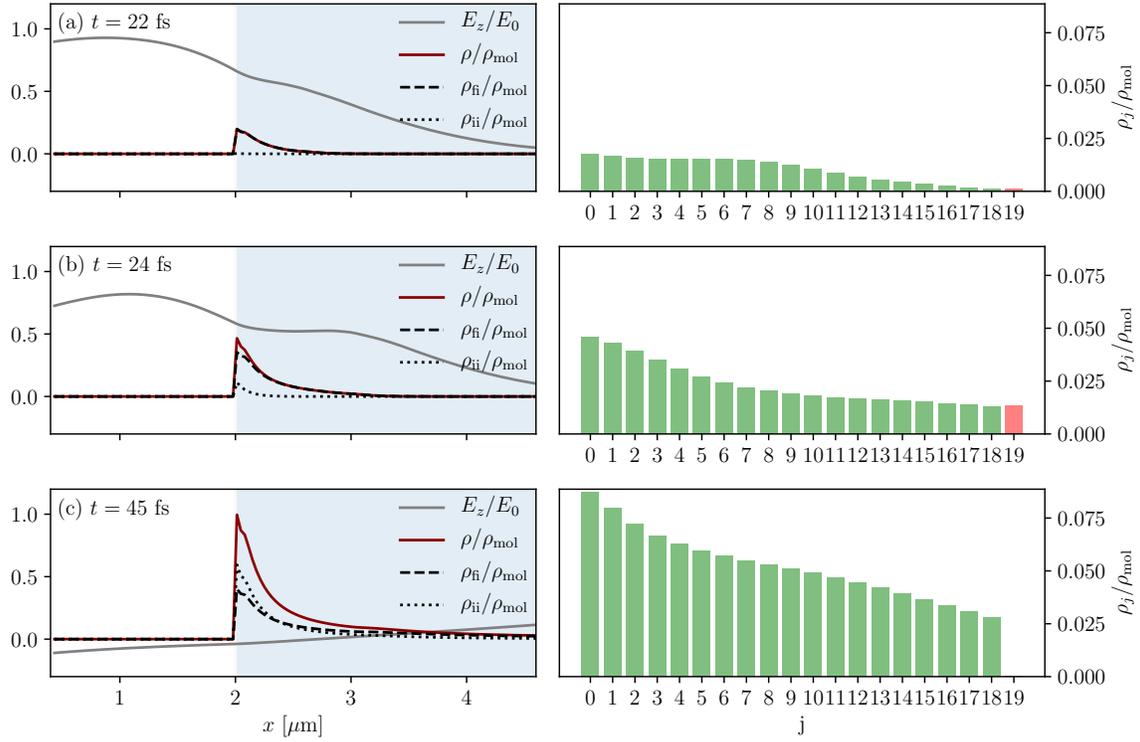


FIGURE 2.6 – (Gauche) Évolution de la densité du plasma ρ à la surface d'un matériau diélectrique irradié par une impulsion laser. La densité du plasma est obtenue avec le modèle MRE [voir l'équation (2.17)]. (Droite) Populations des niveaux d'énergie dans la bande de conduction. En rouge est indiqué le niveau supérieur qui est le seul à contribuer à l'ionisation par impact. Les paramètres sont $n = 1.3$, $\gamma = 2 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$, $\mathcal{E}_g = 9 \text{ eV}$, $\rho_{\text{mol}} = 2 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}$, $\lambda = 800 \text{ nm}$, $\tau = 10 \text{ fs}$, $F = 3 \text{ J/cm}^2$. Le taux de collisions γ_n^s est calculé avec l'équation (2.26) et la section efficace $\sigma_{\text{mol}} = 10^{-19} \text{ m}^2$. Dans cet exemple, le temps caractéristique est $t_{\text{MRE}} \sim 5.2 \text{ fs}$, à la surface.

est proportionnelle à l'intensité laser [voir la section 1.4.2, équation (1.40) avec $\gamma_{\text{jh}} \propto E^2$], ce qui suggère qu'une intensité suffisante pourrait quand même déclencher une avalanche d'ionisation. Finalement, une condition basée sur la fluence du laser F [voir l'équation (2.29)] serait plus générale. Une bonne référence est la condition $F > It_{\text{MRE}}$, proposée dans [76].

2.3.3 Modèle à taux décalés

Le modèle à taux décalés (DRE, pour *delayed-rate equations*) est une approche différente aux problèmes du modèle à taux simple (SRE). Comparé au modèle à taux multiples (MRE), DRE requiert un nombre réduit et fixe d'équations différentielles. Une comparaison de solutions numériques pour DRE, SRE et MRE avec des données expérimentales suit aux sections 2.4 et 2.5.

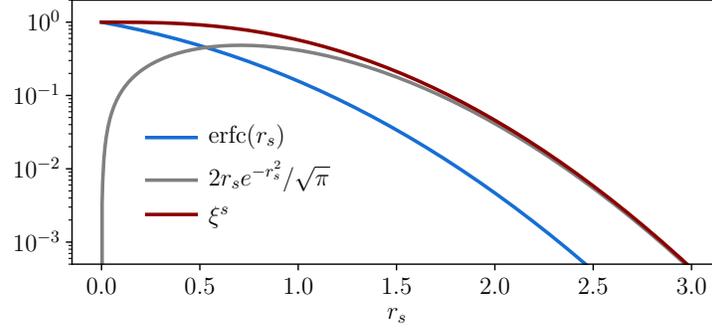


FIGURE 2.7 – Fraction ξ^s de porteurs de charge ayant une énergie cinétique supérieure à \mathcal{E}_c , en fonction du paramètre sans dimension r_s [voir l'équation (2.20b)]. Les deux termes de l'équations (2.20b) sont montrés à titre indicatif.

Tel que discuté à la section 2.3.2, des pics de population apparaissent dans la distribution d'énergie des électrons calculée avec l'approche cinétique de Kaiser *et al.* [51]. Ces pics ont motivé le développement du modèle à taux multiples qui s'appuie sur la discrétisation des niveaux d'énergie des porteurs de charge ($\hbar\omega, 2\hbar\omega, \dots$). Toutefois, avec cette approche (MRE) vient le choix de négliger la thermalisation due aux collisions entre les électrons et conséquemment, l'élargissement et la disparition graduelle des pics, vers une distribution d'énergie à l'équilibre. Une stratégie différente (voire opposée) que celle proposée avec MRE, l'approche de DRE est de faire l'approximation que la thermalisation de la distribution d'énergie est (quasi-) instantanée (voir la section 2.4 pour une comparaison directe des deux approches).

En utilisant la *distribution de Maxwell-Boltzmann* (MB) afin de représenter les énergies des électrons à l'équilibre thermique, on peut calculer analytiquement la proportion de porteurs de charge qui ont l'énergie minimale requise afin de contribuer à l'ionisation par impact [voir l'équation (2.16)]. La fraction d'électrons ξ^e ou de trous ξ^h qui a une énergie $\mathcal{E} > \mathcal{E}_c$ est

$$\xi^s = \frac{\int_{\mathcal{E}_c}^{\infty} \mathcal{E}^{1/2} \exp[-3\mathcal{E}/2\mathcal{E}_{\text{kin}}^s] d\mathcal{E}}{\int_0^{\infty} \mathcal{E}^{1/2} \exp[-3\mathcal{E}/2\mathcal{E}_{\text{kin}}^s] d\mathcal{E}} \quad (2.20a)$$

$$= \text{erfc}(r_s) + \frac{2r_s}{\sqrt{\pi}} \exp(-r_s^2), \quad (2.20b)$$

où s indique le type de porteur de charge ($s = e$ pour les électrons et $s = h$ pour les trous) et $r_s = \sqrt{3\mathcal{E}_c/2\mathcal{E}_{\text{kin}}^s}$, avec $\mathcal{E}_{\text{kin}}^s$ étant l'énergie cinétique. La proportion ξ^s et ses deux termes individuels sont montrés à la figure 2.7 en fonction du paramètre sans dimension r_s . Les deux termes sont presque égaux quand $r_s = 0.5$, là où le second terme devient rapidement dominant à partir de $r_s > 1$.

Introduisant la fraction ξ^s , l'équation d'évolution pour la densité de plasma devient alors

$$\frac{d\rho}{dt} = \nu_{\text{fi}}\rho_n + \sum_{s=e,h} \gamma_n^s \xi^s \rho - \gamma_r \rho, \quad (2.21)$$

qui est similaire à l'équation (2.18), mais avec ρ_k^s remplacé par $\xi^s \rho$. La différence principale entre MRE et DRE devient alors plus claire. MRE suit l'évolution des énergies des porteurs de charge à mesure qu'ils absorbent des photons et la proportion qui contribue à l'ionisation par impact est la population du niveau supérieur à \mathcal{E}_c divisé par la population totale (ρ_k^s/ρ) sur une distribution d'énergie en déséquilibre thermique. Pour sa part, DRE force l'équilibre thermique et la distribution d'énergie est alors connue et la fraction ξ^s peut être directement calculée analytiquement. Finalement, les autres termes de l'équation (2.21) associés à l'ionisation par rayonnement ($\nu_{\text{fi}}\rho_n$) et à la recombinaison des paires électron-trou ($\gamma_r \rho$) sont identiques pour les trois modèles (DRE, MRE et SRE) [voir les équations (2.21), (2.18) et (2.15), respectivement].

Ainsi, la simplicité du modèle à taux décalés vient de la possibilité d'utiliser la distribution de Maxwell-Boltzmann. Il manque toutefois de connaître l'énergie cinétique moyenne des porteurs de charge $\mathcal{E}_{\text{kin}}^s$ afin de résoudre l'équation (2.20b). On utilise alors l'équation différentielle

$$\frac{d\mathcal{E}_{\text{kin}}^s}{dt} = \gamma_{\text{jh}}^s \hbar\omega - \gamma_n^s \xi^s \mathcal{E}_c - \mathcal{E}_{\text{kin}}^s \left[\nu_{\text{fi}} \frac{\rho_n}{\rho} + \sum_{s=e,h} \gamma_n^s \xi^s \right]. \quad (2.22)$$

Le premier terme du côté droit est associé à l'absorption de photons dont le taux peut être calculé avec les équations de l'effet Joule présenté à la section 1.4.2 [voir l'équation (1.42)]. Le second terme représente la perte d'énergie cinétique lors d'une ionisation par impact. Les termes finaux (entre crochets) assurent la conservation d'énergie pour chaque ionisation (par rayonnement ou par impact) et redistribuent l'énergie cinétique aux nouveaux porteurs de charge. Les résultats d'une simulation de la formation de plasma, utilisant le modèle DRE, à la surface d'un diélectrique irradiée d'une impulsion laser sont montrés à la figure 2.8.

Un bout de chemin peut être fait du côté analytique afin de mieux comprendre certains comportements du modèle DRE. On peut commencer en se penchant sur le cas d'une interaction entre une impulsion laser et un diélectrique. On ignore également la contribution des trous pour l'instant ($\rho^h = 0$), ainsi que la recombinaison ($\gamma_r = 0$). Initialement, soit à $t = 0$, on peut supposer qu'il n'y a aucun porteur de charge et que la fraction ξ^e est nulle. Puis, quand l'ionisation par rayonnement commence à apporter des électrons dans la bande de conduction, ceux-ci vont graduellement absorber de l'énergie du champ électromagnétique, augmentant ainsi l'énergie cinétique moyenne et la valeur de ξ^e . À un certain moment, on peut s'attendre

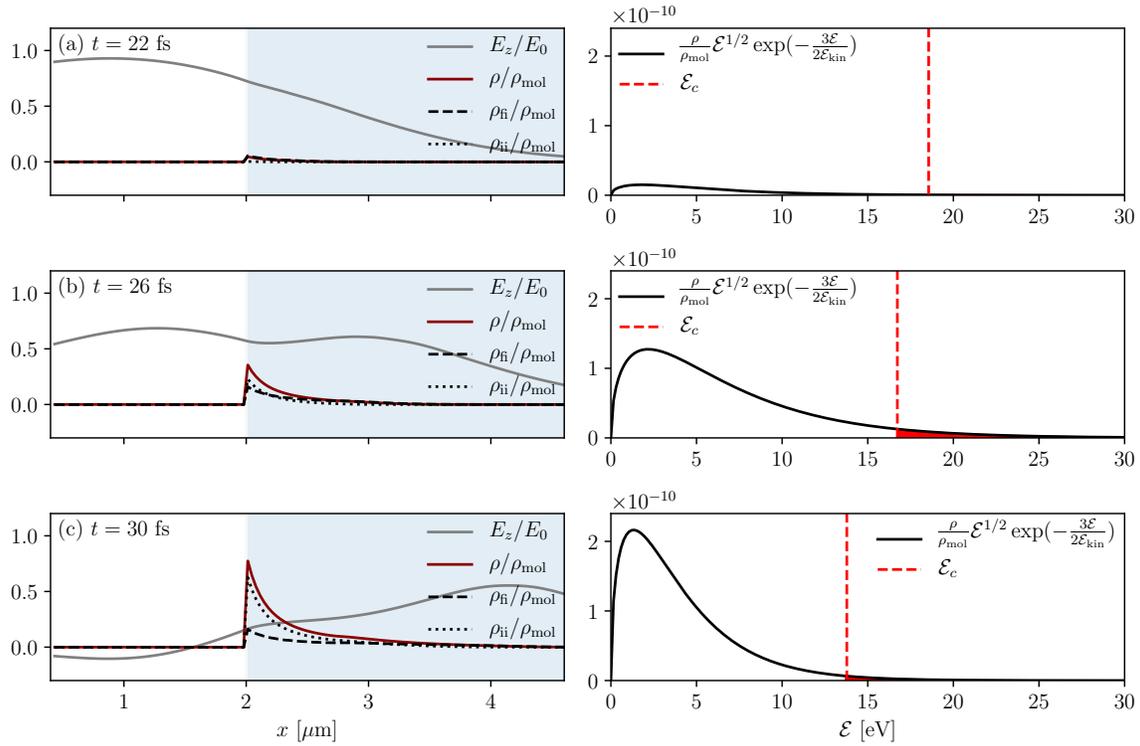


FIGURE 2.8 – (Gauche) Évolution de la densité du plasma ρ à la surface d'un matériau diélectrique irradié par une impulsion laser. La densité du plasma est obtenue avec le modèle DRE [voir l'équation (2.21)]. (Droite) Distribution de l'énergie des électrons dans la bande de conduction. La ligne pointillée verticale indique l'énergie critique \mathcal{E}_c . En rouge est indiquée l'aire sous la courbe pour $\mathcal{E} > \mathcal{E}_c$, proportionnelle à ξ , donc à la fraction des électrons qui contribue à l'ionisation par impact. Les paramètres sont $n = 1.3$, $\gamma = 2 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$, $\mathcal{E}_g = 9 \text{ eV}$, $\rho_{\text{mol}} = 2 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}$, $\lambda = 800 \text{ nm}$, $\tau = 10 \text{ fs}$, $F = 2 \text{ J/cm}^2$. Le taux de collisions γ_n^s est calculé avec l'équation (2.26) et la section efficace $\sigma_{\text{mol}} = 10^{-19} \text{ m}^2$. Dans cet exemple, le temps caractéristique est $t_{\text{DRE}} \sim 2.7 \text{ fs}$, à la surface.

PyPlasma 2.3: Modèle à taux décalés (DRE)

script complet : `pyplasma/examples/capsules/2.3_delayed_rate_equations.py`

Afin d'utiliser DRE et reproduire la figure 2.8, on fait :

```
material = Material(index=1.3, drude_params={'damping':2e15},
                   ionization_params={'rate_equation':'dre', 'bandgap':9*eV,
                                       'density':2e28, 'cross_section':1e-19})
```

à ce que les gains d'énergie s'équilibrent avec les pertes dues à l'ionisation par impact de plus en plus importantes, c'est-à-dire, $\gamma_{\text{jh}}^e \hbar\omega \simeq \gamma_n^e \xi^e \mathcal{E}_c$. Négligeant l'épuisement de la population des électrons de la bande de valence ($\rho_n \simeq \rho_{\text{mol}}$), la population d'électrons de la bande de conduction évolue alors approximativement comme

$$\frac{d\rho^e}{dt} \simeq \nu_{\text{fi}}\rho_{\text{mol}} + \left(\frac{\gamma_{\text{jh}}^e \hbar\omega}{\mathcal{E}_c} \right) \rho^e, \quad (2.23)$$

dont la solution (avec $\rho(0) = 0$) est

$$\rho^e(t) = \nu_{\text{fi}}\rho_{\text{mol}} \frac{\mathcal{E}_c}{\gamma_{\text{jh}}^e \hbar\omega} \left[\exp\left(\frac{\gamma_{\text{jh}}^e \hbar\omega}{\mathcal{E}_c} t \right) - 1 \right]. \quad (2.24)$$

Cette solution montre qu'une augmentation exponentielle de la densité de plasma prend place, ce qu'on qualifie d'*avalanche d'ionisation*. L'argument de cette fonction exponentielle permet d'identifier le temps caractéristique de l'avalanche

$$t_{\text{DRE}} = \frac{1}{\gamma_{\text{jh}}^e} \frac{\mathcal{E}_c}{\hbar\omega}. \quad (2.25)$$

D'une manière similaire au temps caractéristique présenté pour le modèle MRE [voir l'équation (2.19)], c'est le délai requis pour que l'avalanche d'ionisations se déclenche. Le nom du modèle à taux décalés provient de ce décalage temporel, tant il est central à son comportement général [voir plus bas, la figure 2.9]. Ce décalage provient de la dépendance temporelle de l'ionisation par impact introduite dynamiquement *via* les équations (2.22) et (2.20b), une approche différente de ce qui est proposé dans [104] où un délai constant est simplement imposé. Dans la section suivante, il sera démontré que l'équation (2.25) prédit un décalage temporel pour l'avalanche comparable à ce que prédit le modèle à taux multiples [voir l'équation (2.19), avec $k \sim \mathcal{E}_c/\hbar\omega$], ce qui suggère que la dynamique de thermalisation du plasma (tel que décrit par Kaiser *et al.* [51]) n'a qu'une importance limitée dans le processus global d'avalanche d'ionisations.

2.4 Analyse numérique des modèles de formation de plasma

Jusqu'ici, trois modèles de formation de plasma (SRE, MRE et DRE) ont été présentés, où chacun décrit l'évolution temporelle de la densité de porteurs de charge durant une interaction entre un diélectrique et un champ électromagnétique. La différence entre ces modèles provient de leurs façons de traiter l'ionisation par impact et particulièrement, le délai associé au gain d'énergie graduel dans la bande de conduction.

On étudie maintenant le comportement de chaque modèle en calculant numériquement la densité de plasma généré provenant de l'ionisation par impact ρ_{ii} par rapport à la densité

totale générée quand un champ électrique harmonique $E(t) = E_0 \cos(\omega t)$ est appliqué. Pour chaque modèle, l'intensité laser I est choisie de façon à obtenir $\rho_{ii}/\rho \simeq 0.5$ après $t = 100$ fs. Cette intensité précise, pour chaque modèle, correspond au point pour lequel l'ionisation par impact devient le mécanisme d'ionisation dominant ($\rho_{ii}/\rho > 0.5$). Il est pratique de définir un seuil de fluence pour le déclenchement d'une avalanche d'ionisation $F_{av} = I \cdot 100$ fs [voir l'équation (2.29) pour la définition de la fluence].

Afin de décrire l'ionisation par rayonnement, on utilise le modèle de Keldysh [52] qui prend en compte l'ionisation multiphotonique et l'ionisation par effet tunnel avec un formalisme unifié (voir la section 2.2.1). Pour l'instant, la recombinaison des paires électron-trou est toujours laissée de côté ($\gamma_r = 0$). Elle est prise en compte à la section 2.5.

Un ingrédient manque toujours avant de solutionner les équations de taux de formation de plasma, soit une description explicite du taux d'impact entre les porteurs de charge et les atomes/molécules neutres γ_n^s ($s = e$ pour les collisions électron-molécule et $s = h$ pour les collisions trou-molécules). Ce *taux d'impact* peut être traité de plusieurs façons, simples ou complexes. Une simple valeur constante serait acceptable pour aller de l'avant, mais on choisit une description légèrement plus élaborée qui dépend des propriétés dynamiques du plasma provenant de [5], soit

$$\gamma_n^s = \sigma_{\text{mol}} \rho_n \sqrt{\frac{2\mathcal{E}_{\text{kin}}^s}{m_s}}, \quad (2.26)$$

où σ_{mol} est la *section efficace des molécules neutres*. Il est à noter que les résultats obtenus pour DRE ne changent pas significativement si on utilise cette formulation ou une valeur constante pour γ_n^s . Cette observation est supportée par les travaux rapportés par Rethfeld *et al.* [75], où il est montré que la valeur de γ_n^s (ou celle obtenue par une description sous-jacente) n'a que peu d'influence, tant que $\gamma_n^s \gg \gamma_{\text{jh}}^s$.

Les résultats obtenus numériquement par la méthode des différences finies (voir la section 3.1) pour un matériau aux propriétés arbitraires (mais intentionnellement semblables à celles de la silice SiO_2) sont présentés à la figure 2.9. Tel qu'attendu, on voit à la figure 2.9(a) que les densités de plasma générées de l'ionisation par impact prédites par MRE et DRE sont retardées par rapport aux prédictions du modèle SRE. Autant pour MRE que pour DRE, les délais suivent approximativement leurs valeurs estimées respectives des équations (2.19) et (2.25), soient $t_{\text{MRE}} = 83.2$ fs et $t_{\text{DRE}} = 76.5$ fs. Tel qu'illustré à la figure 2.9(b), les contributions de l'ionisation par impact pour MRE et DRE sont radicalement réduites pour des valeurs de fluence inférieures au seuil ($F < F_{av}$). Au-delà du seuil, les trois modèles montrent une tendance similaire.

On rappelle que le modèle à taux multiples a été développé dans la limite où il n'y a pas de

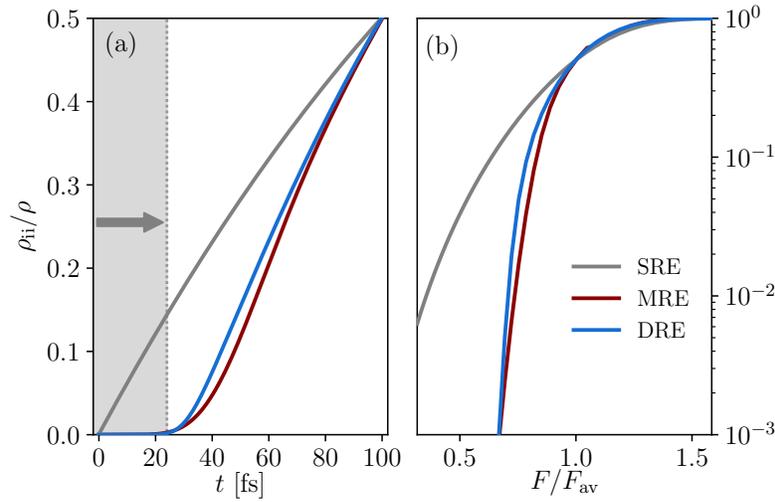


FIGURE 2.9 – Contribution relative de l'ionisation par impact ρ_{ii} par rapport à la densité de plasma totale ρ obtenue avec les modèles SRE, MRE ou DRE. En (a), on montre que l'ionisation par impact prédite avec le modèle SRE commence dès le début de l'irradiation avec le champ harmonique, tandis qu'un décalage temporel est observé si on utilise le modèle MRE ou DRE. Ce décalage correspond au temps requis pour que les porteurs de charge atteignent l'énergie critique \mathcal{E}_c . Les fluences respectives à chaque modèle requises pour atteindre $\rho_{ii}/\rho > 0.5$ durant l'interaction de 100 fs sont $F_{av}^{SRE} = 0.420 \text{ J/cm}^2$, $F_{av}^{MRE} = 0.459 \text{ J/cm}^2$ et $F_{av}^{DRE} = 0.356 \text{ J/cm}^2$, définissant les seuils d'avalanche. En (b), on montre que la contribution de l'ionisation par impact pour MRE et DRE est grandement diminuée pour $F < F_{av}$, par rapport à SRE. Ceci montre que l'avalanche est fortement inhibée si les électrons n'ont pas le temps d'atteindre l'énergie critique \mathcal{E}_c . Les paramètres sont $\lambda = 800 \text{ nm}$, $\mathcal{E}_g = 9 \text{ eV}$, $m_e = m_h = m_0$, $\rho_{mol} = 2 \times 10^{28} \text{ m}^{-3}$, $\sigma_{mol} = 10^{-19} \text{ m}^2$, $n_0 = 1.5$, $\gamma_r = 0$, $\gamma = 1 \text{ fs}^{-1}$ et $\alpha = 4 \text{ cm}^2/\text{J}$.

thermalisation de la distribution d'énergie dans la bande de conduction, ou de façon équivalente, dans la limite d'un temps de thermalisation infini. En comparaison, le modèle à taux décalés a été développé dans la limite d'un temps de thermalisation infinitésimal. La figure 2.9 montre ainsi que pour une vaste plage de fluences, la dynamique de formation de plasma est très semblable dans les deux limites, un argument convaincant que le temps de thermalisation n'a que peu d'importance sur le phénomène global.

On attaque maintenant un nouveau scénario afin de tester le modèle à taux décalés dans des conditions plus réalistes, avec une impulsion laser gaussienne interagissant avec un matériau semblable à la silice SiO_2 . L'enveloppe de l'impulsion laser dans le vide est décrite par

$$E_{vac}(t) = E_0 \exp \left[-2 \ln(2) \left(\frac{t}{\tau} \right)^2 \right], \quad (2.27)$$

où τ est la durée de l'impulsion (largeur à mi-hauteur). L'intensité et la fluence, toujours dans

le vide sont alors

$$I_{\text{vac}}(t) = c\epsilon_0 |E_{\text{vac}}(t)|^2 = c\epsilon_0 E_0^2 \exp \left[-4 \ln(2) \left(\frac{t}{\tau} \right)^2 \right], \quad (2.28)$$

et

$$F = \int_{-\infty}^{\infty} I_{\text{vac}}(t) dt = \frac{c\epsilon_0 E_0^2 \tau}{2} \sqrt{\frac{\pi}{\ln(2)}}, \quad (2.29)$$

respectivement. Dans le milieu diélectrique, l'amplitude du champ électrique est diminuée d'un facteur n_0 et la partie réfléchiée est retirée, devenant alors

$$E_{\text{bulk}}^2(t) = E_{\text{vac}}^2(t) \frac{1-R}{n_0}, \quad (2.30)$$

où la réflectivité R est

$$R = \left| \frac{n-1}{n+1} \right|^2 \quad (2.31)$$

et

$$n^2 = n_0^2 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma}. \quad (2.32)$$

Cette dernière relation est obtenue à partir du modèle de Drude (voir la section 1.4) avec la fréquence de plasma $\omega_p^2 = q^2 \rho / \epsilon_0 m_r$ calculée dynamiquement à mesure que la densité de plasma ρ augmente.

En intégrant numériquement les équations du modèle à taux décalés avec la source de rayonnement $E_{\text{bulk}}(t)$, pour les durées d'impulsions $\tau = 10$ fs et $\tau = 300$ fs, on obtient les résultats présentés à la figure 2.10. Au début de l'interaction, le plasma généré provient principalement de l'ionisation par rayonnement [voir les figures 2.10(a) et 2.10(d)] tel qu'attendu. À mesure que le plasma absorbe de l'énergie et qu'une proportion grandissante de porteurs de charge atteint l'énergie critique \mathcal{E}_c , le mécanisme de formation de plasma principal devient l'ionisation par impact.

Aux figures 2.10(b) et 2.10(e), l'énergie cinétique moyenne des électrons $\mathcal{E}_{\text{kin}}^e$ est comparée à l'énergie de Fermi

$$\mathcal{E}_F = \hbar^2 (3\pi^2 \rho)^{2/3} / 2m_e. \quad (2.33)$$

Pour les deux simulations, la condition $\mathcal{E}_{\text{kin}}^e > \mathcal{E}_F$ est respectée en tout temps, ce qui suggère que l'utilisation d'une distribution de Fermi-Dirac dans le calcul du ratio ξ^s , plutôt que la distribution de Maxwell-Boltzmann ne soit pas nécessaire.

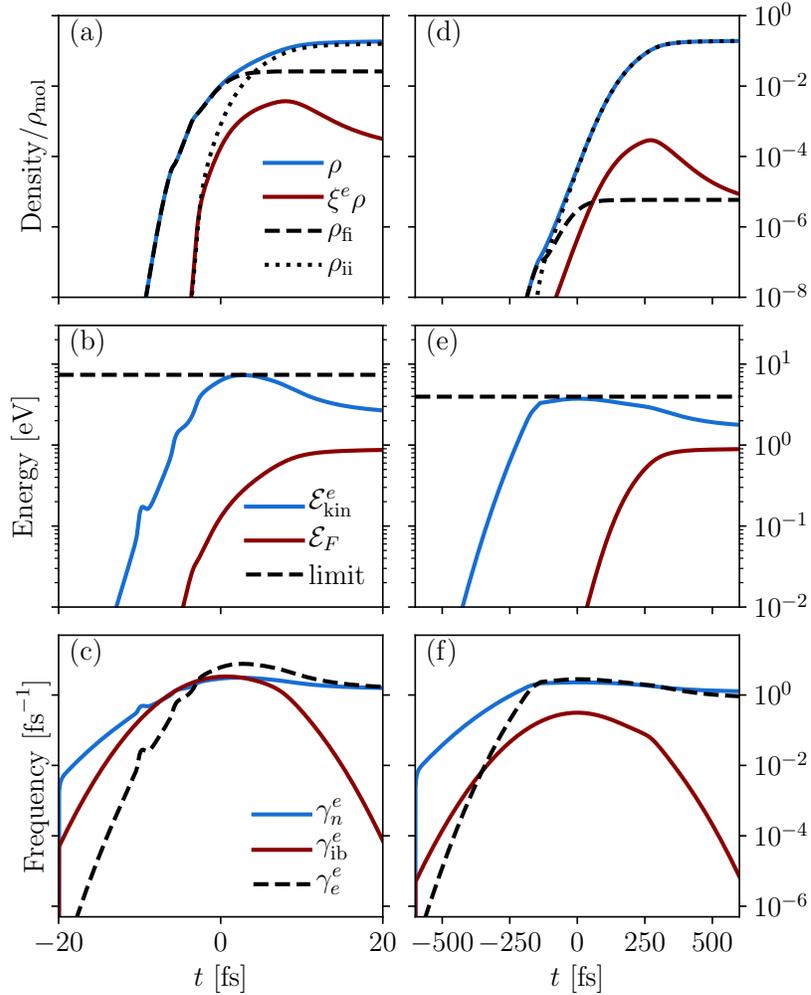


FIGURE 2.10 – Deux exemples de solutions pour le modèle DRE. La colonne de gauche [(a) à (c)] montre les résultats pour une durée d’impulsion ultra brève $\tau = 10$ fs et $F = 1.6$ J/cm². La colonne de droite [(d) à (f)] montre les résultats pour une impulsion plus longue, avec $\tau = 300$ fs et $F = 4.8$ J/cm². Dans les deux cas, la fluence est ajustée afin d’atteindre $\rho/\rho_{\text{mol}} = 0.1$, correspondant à 10 % des atomes/molécules ionisés. Les paramètres du modèle sont $\lambda = 800$ nm, $\mathcal{E}_g = 9$ eV, $m_e = m_h = m_0$, $\rho_{\text{mol}} = 2 \cdot 10^{28}$ m⁻³, $\sigma_{\text{mol}} = 10^{-19}$ m², $n_0 = 1.5$, $\gamma_r = 0$ et $\gamma = 1$ fs⁻¹.

Une estimation pour la limite supérieure de l'énergie cinétique moyenne des porteurs de charge $\mathcal{E}_{\text{kin}}^s$ peut être obtenue dans le régime où $\gamma_{\text{jh}}^s \hbar \omega \simeq \gamma_n^s \xi^s \mathcal{E}_c$ [voir le paragraphe qui précède l'équation (2.23)]. Dans ce régime, les gains d'énergie provenant de l'absorption de photons sont équilibrés par les pertes dues aux collisions avec les électrons de la bande de valence. On a alors $d\mathcal{E}_{\text{kin}}^s/dt \sim 0$ et l'énergie cinétique moyenne est à son maximum. En général, quand l'intensité n'est pas extrêmement élevée, on a $\mathcal{E}_{\text{kin}}^s \ll \mathcal{E}_c$ et seule une infime fraction des porteurs de charge atteignent l'énergie critique. Dans ce régime, $r_s \gg 1$ et $\xi^s \simeq \frac{2r_s}{\sqrt{\pi}} \exp(-r_s^2)$ ce qui permet, en utilisant l'équation (2.26), d'obtenir la limite supérieure explicite

$$\mathcal{E}_{\text{kin}}^s < -\frac{3}{2} \mathcal{E}_c \left[\ln \left(\frac{\gamma_{\text{jh}}^s \hbar \omega}{2\mathcal{E}_c \sigma_{\text{mol}} \rho_{\text{mol}}} \sqrt{\frac{m_s \pi}{3\mathcal{E}_c}} \right) \right]^{-1}. \quad (2.34)$$

Cette approximation est en excellent accord avec les solutions numériques montrés aux figures 2.10(b) et 2.10(e) (voir les lignes horizontales). La relation (2.34) prédit que l'énergie cinétique moyenne ne devrait pas dépasser la valeur du côté droit de l'inégalité. Par exemple, à la figure 2.10(b), la limite supérieure prédite est 7.214 eV et le maximum obtenu durant l'intégration numérique est 7.035 eV (une sur-estimation de 2.54%). Pour la seconde simulation, avec une durée d'impulsion plus longue [voir la figure 2.10(e)], la limite supérieure prédite est 3.957 eV et la valeur maximale de la simulation est 3.742 eV (une sur-estimation de 5.75%).

Les taux d'absorption γ_{jh}^e et les taux de collisions électron-molécule neutre γ_n^e sont montrés aux figures 2.10(c) et 2.10(f). À titre purement indicatif, une estimation des taux de collisions électron-électron γ_e^e est également montrée, en utilisant la formule tirée de [21],

$$\gamma_e^e = \frac{4\pi\epsilon_0}{q^2} \sqrt{\frac{6}{m_e}} \left(\frac{2\mathcal{E}_{\text{kin}}^e}{3} \right)^{3/2}. \quad (2.35)$$

On observe une augmentation rapide du taux de collisions électron-électron γ_e^e dès le début de l'interaction avec l'impulsion laser, à mesure que le plasma est généré *via* l'ionisation par rayonnement. Lorsque l'avalanche d'ionisation par impact prend le dessus, sa valeur diminue légèrement vers approximativement 1 à 10 collisions par femtoseconde, ce qui supporte l'hypothèse d'une relaxation thermique rapide sur laquelle repose le modèle à taux décalés.

2.5 Calibration du modèle à taux décalés aux expériences

Le modèle à taux décalés présenté à la section 2.3.3 dépend d'un nombre fixe de paramètres. Certains peuvent être directement reliés à des propriétés physiques d'un matériau irradié qui pourront être mesurées expérimentalement ou par des calculs *ab initio* (par exemple, l'indice de réfraction n_0 , la section efficace σ_{mol} , ...). Ci-dessous, il est montré comment les paramètres

restants peuvent être obtenus en calibrant le modèle aux mesures expérimentales du *seuil de dommage laser*.

Le *seuil de dommage laser* est une référence expérimentale souvent utilisée pour calibrer les modèles de formation de plasma dans les diélectriques. Ce seuil est souvent défini comme la *fluence laser minimale* F_{th} requise pour causer des modifications structurelles permanentes au matériau irradié. Parfois, le seuil d'ablation laser est plutôt utilisé, défini comme la fluence laser minimale requise pour causer une *ablation* de la surface, i.e. une expulsion d'ions qui laisse un cratère là où l'impulsion laser a interagi. Dans ce chapitre, seule l'échelle temporelle sous-picoseconde de l'interaction et de la formation de plasma est étudiée et les dommages ou l'ablation du matériau ne sont pas abordés, on utilise donc une condition différente, à savoir la fluence laser minimale requise pour que la densité de plasma atteigne une valeur critique $\rho \gtrsim \rho_c$. Généralement, le choix de cette densité critique a peu d'influence sur les seuils F_{th} , à cause de la nature exponentielle d'une avalanche d'ionisation. Si la fluence est suffisamment élevée afin de déclencher une avalanche, une augmentation infime de la fluence supplémentaire entraîne une augmentation disproportionnée de la densité finale de plasma formé et le choix de la valeur exacte de ρ_c n'a plus vraiment d'importance. Ceci étant dit, il faut quand même choisir une valeur et le choix le plus fréquent est la densité de plasma pour laquelle le matériau initialement transparent devient opaque. Ceci se produit lorsque la partie réelle de l'indice de réfraction devient égale à sa partie imaginaire [ou encore, de façon équivalente, lorsque $\text{Re}[\epsilon(\omega)] = 0$, voir (1.33)] . Selon le modèle de Drude, avec l'équation (2.32), on trouve la densité critique ³

$$\rho_c = \left(\frac{\epsilon_0 m_r}{q^2} \right) n_0^2 (\omega^2 + \gamma^2). \quad (2.36)$$

Afin de calibrer le modèle DRE présenté à la section 2.3.3, ses solutions sont comparées aux données expérimentales provenant de [60]. Les intégrations numériques du modèle sont effectuées en balayant les paramètres de la durée d'impulsion τ et de la fluence du laser F pour des impulsions incidentes décrites par l'équation (2.30). Pour chaque valeur de τ , la fluence F minimale qui entraîne la formation d'une densité de plasma minimale ρ_c [voir l'équation (2.36)] est identifiée comme le seuil de fluence F_{th} . Les résultats pour différents matériaux sont montrés à la figure 2.11. Les paramètres des simulations sont donnés au tableau 2.1.

En pratique, les courbes obtenues à la figure 2.11 ne dépendent que de deux paramètres efficaces libres, γ et m_e . Afin d'optimiser la recherche de la meilleure combinaison, on utilise l'observation que la relation entre F_{th} et τ ressemble à une loi de puissance de la forme

3. La densité critique diffère d'un facteur n_0^2 par rapport à (1.36), car cette dernière a été obtenue sans la contribution des courants liés.

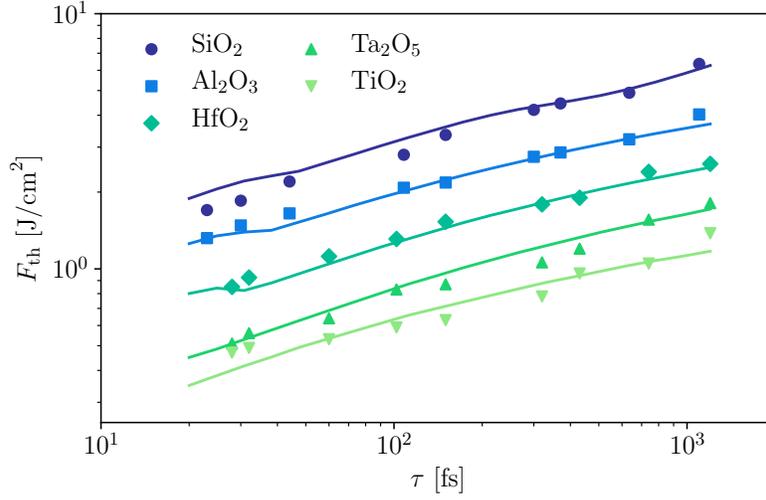


FIGURE 2.11 – Comparaison entre les prédictions du modèle DRE (courbes) et des résultats expérimentaux (points/formes) pour les seuils de fluences F_{th} en fonction de la durée d’impulsion τ pour différents matériaux diélectriques. Les données expérimentales proviennent de [60]. Les paramètres des calculs DRE sont indiqués dans le tableau 2.1.

	SiO ₂	Al ₂ O ₃	HfO ₂	Ta ₂ O ₅	TiO ₂
n_0	1.45	1.76	2.09	2.1	2.52
\mathcal{E}_g [eV]	9.0	6.5	5.1	3.8	3.3
ρ_{mol} [$10^{28}/\text{m}^3$]	2.20	2.35	2.77	1.12	3.19
σ_{mol} [10^{-19}m^2]	0.661	1.33	1.24	2.50	1.08
γ_r [ps^{-1}]	4.0	0.0	0.0	0.0	0.0
γ [fs^{-1}]	2.0	1.0	0.5	0.4	0.5
m_e	1.0	0.8	0.4	0.5	0.3
m_h	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0

TABLE 2.1 – Les paramètres des matériaux diélectriques associés aux courbes de la figure 2.11 obtenues avec le modèle DRE. Les valeurs typiques pour les indices de réfraction n_0 , bandes interdites \mathcal{E}_g , taux de recombinaison γ_r et densités moléculaires ρ_{mol} sont tirées de [60, 65]. Pour chaque molécule du tableau, la section efficace σ_{mol} a été estimée en additionnant les sections efficaces individuelles de ses atomes, celles-ci obtenues en prenant l’aire d’un cercle dont le rayon est égal au rayon de covalence de l’atome. Les taux d’amortissement du plasma γ et les masses efficaces m_e (normalisées par rapport à la masse intrinsèque m_0) sont obtenus en ajustant les courbes aux données expérimentales des seuils de fluence (voir les figures 2.11 et 2.12).

$F_{\text{th}} \propto \tau^\kappa$. Une autre observation est que le taux d'amortissement γ affecte principalement l'exposant κ de cette relation et que la masse effective m_e affecte principalement la hauteur de la courbe. On peut alors commencer par trouver une valeur de γ qui permet de s'approcher raisonnablement du bon exposant κ . Seulement ensuite, la masse effective m_e est ajustée jusqu'à ce que la hauteur de la courbe simulée corresponde aux données expérimentales. Les deux paramètres ne sont pas entièrement indépendants [voir l'équation (2.36)], ce qui implique parfois la nécessité d'itérer la procédure quelques fois. Cependant, les courbes prédites par DRE à la figure 2.11 réussissent à reproduire la tendance globale des mesures expérimentales sur plusieurs ordres de grandeur de durées d'impulsion τ et de fluence F .

2.6 Avalanche d'ionisations sous-picoseconde

Il existe un débat controversé dans la littérature à propos de la possibilité de déclencher une avalanche d'ionisations avec des impulsions laser brèves ($\tau < 1$ ps). Plusieurs études expérimentales et théoriques portant sur la formation de plasma dans des diélectriques ont mené à des conclusions contradictoires [5].

Par exemple, une expérience *pompe-sonde* sur silice [53] a montré qu'une fraction significative de l'ionisation peut se produire après le passage de la pompe, ce qui ne peut être expliqué uniquement par de l'ionisation par rayonnement et suggère une avalanche d'ionisations par impact décalée par rapport à la pompe. Des conclusions inverses ont été obtenues dans une autre expérience sur du saphire [38]. Du côté théorique, des calculs basés sur une formulation de Fokker-Planck [93] ont prédit une forte domination de l'ionisation par impact, tandis que les simulations de [86] prédisent que les énergies cinétiques des porteurs de charges sont trop basses pour que l'ionisation par impact ne soit significative. Certains ont également étudié la possibilité d'une avalanche d'ionisations collisionnelles assistées [73]. Finalement, plusieurs prédictions de la fluence minimale requise pour déclencher une avalanche ont été faites, mais elles varient de plus d'un ordre de grandeur [76, 70].

Si la présence d'une avalanche forme un consensus pour les impulsions picosecondes et plus longues (et dans une certaine mesure, à partir de $\tau > 100$ fs [77]), on peut tenter de vérifier si une transition claire peut être observée dans les courbes du seuil de dommage F_{th} en fonction de la durée d'impulsion τ . Pour la plupart des matériaux diélectriques, les données expérimentales pour la relation $F_{\text{th}}(\tau)$ se font rares, à l'exception de la silice SiO_2 , ce qui en fait un sujet de référence de choix.

Une relation en loi de puissance est généralement observée pour la fluence de seuil en fonction de la durée d'impulsion. On s'attend alors à avoir une relation de la forme $F_{\text{th}}(\tau) \propto \tau^\kappa$. Avant d'aller vérifier les résultats expérimentaux disponibles, on peut tenter d'estimer les

valeurs possibles de κ . Si on accepte l'hypothèse que l'ionisation par rayonnement est le mécanisme dominant, on estime alors que le taux de formation de plasma est

$$\frac{d\rho}{dt} \propto I^k, \quad (2.37)$$

où k est le nombre de photons requis pour une ionisation multiphotonique (pour les intensités en question, on est plus proche du régime multiphotonique que du régime tunnel, avec $\Gamma \sim 2$ quand $F \sim F_{\text{th}}$ à $\tau \sim 100$ fs.). Sachant que la fluence est $F \propto I\tau$, on trouve que la densité de plasma évolue comme

$$\rho(t) \propto \left(\frac{F}{\tau}\right)^k t. \quad (2.38)$$

Près du seuil de dommage F_{th} , on peut estimer que $\rho(\tau) \sim \rho_c$, donc que

$$\rho_c \propto \left(\frac{F_{\text{th}}}{\tau}\right)^k \tau, \quad (2.39)$$

ce qui mène à

$$F_{\text{th}} \propto \tau^{\frac{k-1}{k}}. \quad (2.40)$$

Pour la silice irradiée par une source à $\lambda = 800$ nm, on a $k = 6$ et $F_{\text{th}} \propto \tau^{5/6}$.

On fait une estimation semblable pour l'exposant κ , mais, cette fois, en faisant l'hypothèse que l'ionisation par impact est le mécanisme dominant. Partant de l'équation (2.24) on obtient

$$\rho_c \propto \left(\frac{F_{\text{th}}}{\tau}\right)^{k-1} \exp\left(\frac{F_{\text{th}}}{F_{\text{av}}}\right). \quad (2.41)$$

Pour arriver à cette estimation, on a enlevé le -1 de l'exponentielle, car il devrait être négligeable en situation d'avalanche, puis on pose à nouveau que $\rho(\tau) \sim \rho_c$ correspond à $F \sim F_{\text{th}}$. On utilise ensuite la définition de l'exposant pour la relation en loi de puissance $\kappa = d[\ln(F_{\text{th}})]/d[\ln(\tau)]$ afin de trouver

$$\kappa = \frac{F_{\text{av}}(k-1)}{F_{\text{th}} + k - 1}, \quad (2.42)$$

Cette estimation est implicite, car elle dépend toujours de F_{th} . À partir de données expérimentales, pour $\tau = 100$ fs, on a déjà déterminé que $F_{\text{av}} = 0.356$ J/cm² (voir la figure 2.9) et les valeurs typiques de F_{th} sont proches de 3 J/cm², ce qui donne un exposant de $\kappa \sim 0.22$.

Ainsi, on a fait une estimation de l'exposant en faisant l'hypothèse que l'ionisation par rayonnement était le mécanisme dominant et on a trouvé $\kappa \sim 0.83$. Puis, on a estimé, en faisant l'hypothèse inverse que l'ionisation par impact était plus importante, une valeur de $\kappa \sim 0.22$. Si ces estimations sont moindrement représentatives de la réalité, on a alors trois possibilités.

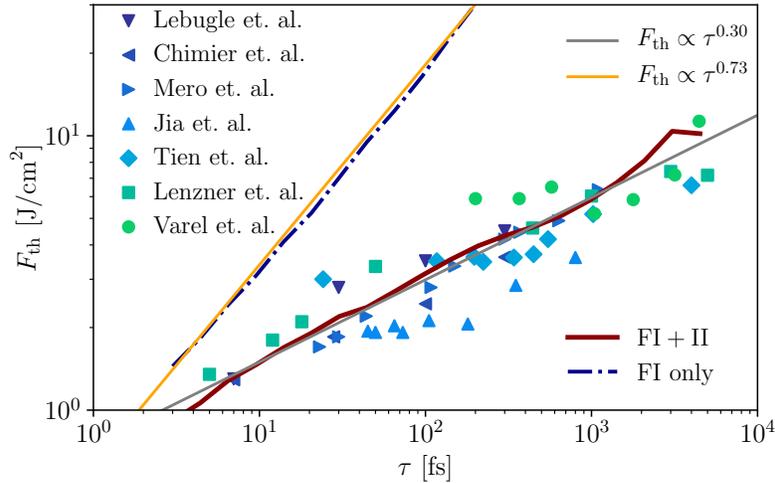


FIGURE 2.12 – Comparaison entre les seuils de fluence F_{th} prédits numériquement et mesurés expérimentalement, en fonction de la durée d’impulsion τ pour la silice (SiO_2). Les données expérimentales proviennent de sept expériences indépendantes [53, 20, 60, 46, 99, 54, 101].

1. L’exposant est grand ($\kappa \sim 0.83$) pour toutes valeurs de $\tau < 1$ ps. Il n’y a alors pas d’avalanche d’ionisation pour les impulsions brèves.
2. L’exposant change graduellement d’une valeur plus grande ($\kappa \sim 0.83$) à une valeur plus petite ($\kappa \sim 0.22$) en réduisant la durée d’impulsion, indiquant un changement de régime et une valeur de τ limite pour la possibilité d’avalanche.
3. L’exposant est petit ($\kappa \sim 0.22$) sur toute la plage de durées d’impulsion pour lesquelles les données expérimentales sont disponibles ($\tau > 5$ fs) et une avalanche d’ionisations est bien possible pour des impulsions aussi brèves.

En regroupant les résultats expérimentaux de $F_{th}(\tau)$ de sept études indépendantes sur de la silice, aucune transition claire n’est observable (voir la figure 2.12). La tendance générale est une relation en loi de puissance $F_{th} \propto \tau^\kappa$, avec $\kappa \simeq 0.3$ pour $\tau < 10$ ps. Cette tendance peut être reproduite en utilisant le modèle à taux décalés avec les paramètres du tableau 2.1 pour la silice (SiO_2). Il semble alors que la troisième hypothèse est la plus probable, soit qu’une avalanche d’ionisation est le principal mécanisme de formation de plasma pour des impulsions de durées aussi brèves que $\tau \sim 5$ fs. Pour appuyer cette conclusion, on peut calculer la fluence de seuil en retirant l’ionisation par impact des simulations. Faisant cela, l’accord en la théorie et les expériences est perdu, avec un exposant de $\kappa \sim 0.73$ (voir la courbe orange de la figure 2.12).

Deuxième partie

**Méthodes numériques :
Électromagnétisme de surface**

Chapitre 3

Discrétisation et intégration numérique

À partir du prochain chapitre sont abordés des problèmes tri-dimensionnels d'une complexité grandissante. Si les premières simulations, plus simples, peuvent être partiellement solutionnées analytiquement, il faudra rapidement se rabattre sur des solutions purement numériques. Les outils permettant d'y arriver sont présentés dans ce chapitre.

3.1 Méthode des différences finies

Une méthode très populaire qui permet de résoudre numériquement pratiquement n'importe quel système d'équations différentielles est la *méthode des différences finies*. Cet outil est simple à implémenter et très versatile, mais est probablement ce qui se rapproche le plus d'une méthode dite de *force brute*. Ainsi, cette simplicité d'utilisation vient avec un grand coût computationnel, par rapport à d'autres méthodes. Toutefois, pour des simulations complexes, c'est souvent le choix le plus raisonnable, voire le seul possible.

Les équations qui doivent être résolues numériquement dans les prochains chapitres sont des équations différentielles (ordinaires ou partielles). Par exemple, une telle équation peut contenir la dérivée de $f(t)$ par rapport à t , évaluée à t_0 , à savoir

$$\left. \frac{df(t)}{dt} \right|_{t_0} = \lim_{t \rightarrow t_0} \frac{f(t) - f(t_0)}{t - t_0}. \quad (3.1)$$

Lorsque l'on cherche une solution analytique, on trouve la valeur vers laquelle converge la dérivée quand $\delta_t = t - t_0 \rightarrow 0$. Avec la méthode des différences finies, la dérivée n'est pas

évaluée à une valeur infinitésimale de δ_t , mais bien à une valeur finie, tel que

$$\left. \frac{df(t)}{dt} \right|_{t_0} = \frac{f(t) - f(t_0)}{t - t_0} + O(\delta_t^2), \quad (3.2a)$$

$$\left. \frac{df(t)}{dt} \right|_{t_0} \approx \frac{f(t) - f(t_0)}{t - t_0}, \quad (3.2b)$$

Le terme $O(\delta_t^2)$ indique que l'erreur locale de l'approximation est proportionnelle à δ_t^2 . Donc, plus ce pas est petit, meilleure est la précision. Il existe une grande variété de recettes de discrétisation, plus complexes, mais plus précises que cette dernière. Pour cet exemple, on s'en tient au cas le plus simple, mais le lecteur peut compléter cette lecture avec [55], pour les autres approches.

Afin de représenter $f(t)$ pour une plage de valeurs de t , il faut discrétiser t , soit séparer cette variable continue en un ensemble fini de valeurs discontinues (voir la figure 3.1). Puis, on solutionne pour toutes les valeurs discrètes de t . Avec cette méthode itérative, l'erreur locale mentionnée plus haut, proportionnelle à δ_t^2 , va se propager. L'erreur globale sur la solution de $f(t)$ est plutôt proportionnelle à δ_t .

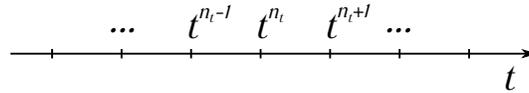


FIGURE 3.1 – Discrétisation de la variable continue t en un ensemble de valeurs discontinues.

Un exemple s'impose afin de démontrer l'efficacité de la méthode. L'équation différentielle

$$\frac{df(t)}{dt} = e^{-t^2} \quad (3.3)$$

est un bon candidat, car on peut comparer les solutions numériques qui seront obtenues avec une solution analytique qui est connue, soit

$$f(t) = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \operatorname{erf}(t) + c, \quad (3.4)$$

où $\operatorname{erf}(t)$ est la fonction d'erreur et c est une constante d'intégration. Avec la condition initiale $f(0) = 0$, on impose $c = 0$.

Maintenant, pour la solution numérique, on discrétise t en N_t valeurs discrètes séparées de δ_t . La version discrète de l'équation (3.3) est alors

$$\frac{f^{n_t+1} - f^{n_t}}{\delta_t} = e^{-(n_t \delta_t)^2}, \quad (3.5)$$

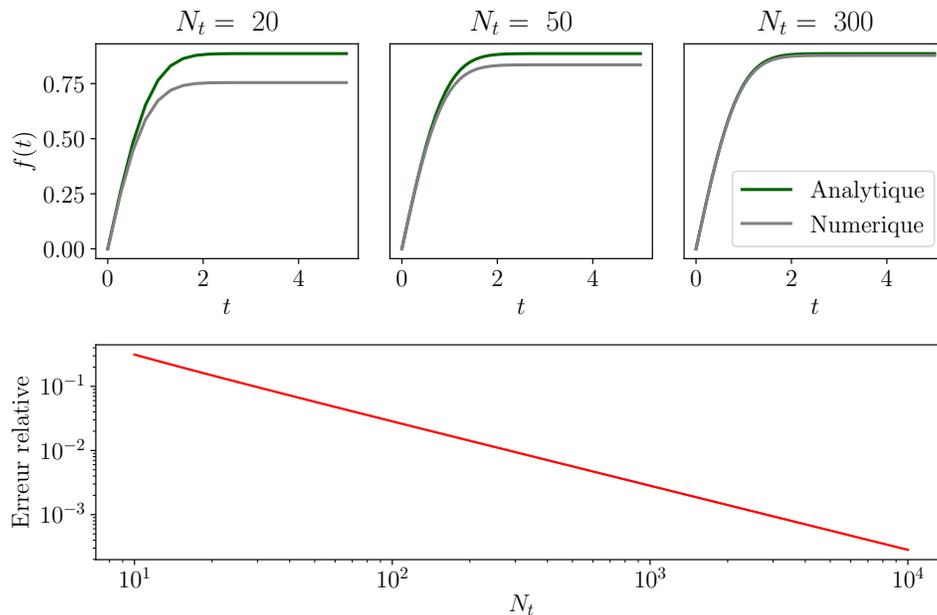


FIGURE 3.2 – Intégration numérique de l'équation différentielle (3.3) avec la méthode des différences finies. L'intégration numérique est effectuée avec l'équation (3.6), que l'on compare à la solution analytique [voir l'équation (3.4)], pour différents nombres d'itérations N_t . La précision augmente avec le nombre d'itérations. À $N_t = 20$, le nombre d'itérations est beaucoup trop petit et l'erreur entre les solutions numérique et analytique est très grande. À l'inverse, avec $N_t = 300$, la solution numérique converge vers la solution analytique. Le graphique du bas montre l'erreur relative de la méthode numérique en fonction du nombre d'itérations N_t .

où n_t est l'indice correspondant à la n_t ième valeur discrète. La solution s'obtient simplement en isolant f^{n_t+1} , soit

$$f^{n_t+1} = f^{n_t} + \delta_t e^{-(n_t \delta_t)^2}. \quad (3.6)$$

De la même façon qu'il faut une condition initiale à une solution analytique afin qu'elle soit unique, il faut en imposer une à la solution numérique. On choisit $f^0 = 0$, ce qui permet de démarrer l'intégration numérique. Avec $n_t = 0$ et $f^0 = 0$ que l'on insère du côté droit de l'équation, on obtient f^1 . Puis, avec $n_t = 1$ et la solution pour f^1 , on trouve f^2 et ainsi de suite. Les solutions numériques obtenues pour différents niveaux de discrétisation sont comparées à la solution analytique à la figure 3.2. Tel que discuté plus haut, une discrétisation trop agressive peut causer des erreurs importantes (voir les cas $N_t = 20$ et $N_t = 50$ de la figure 3.2). En augmentant le nombre de valeurs discrètes, ainsi réduisant la taille de δ_t , la précision augmente et la solution numérique converge graduellement vers la solution analytique.

Bien-sûr, réduire δ_t et le nombre d'itérations est une façon simple de diminuer l'erreur, mais pas la plus efficace dans la plupart des cas. Le schéma d'intégration (3.6) est obtenu avec la

méthode d'Euler (qui est également la méthode de Runge-Kutta d'ordre inférieur [81]), qui est en réalité très simpliste. Il est souvent préférable de se tourner vers des schémas d'intégration d'ordres supérieurs qui réduisent l'ordre de l'erreur locale.

3.2 Discrétisation des équations de Maxwell

Les équations de Maxwell décrites au chapitre 1 [voir les équations (1.1a) à (1.1d)] sont des équations différentielles partielles qui peuvent être résolues numériquement avec la méthode des différences finies. Dans le cas des équations de Maxwell, on réfère souvent à cette méthode par *finite-difference time-domain* ou FDTD [96].

La version continue des deux dernières équations de Maxwell peut être écrite comme

$$\nabla \times \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial \vec{H}}{\partial t}, \quad (3.7a)$$

$$\nabla \times \vec{H} = \epsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} + \vec{J}, \quad (3.7b)$$

en ignorant l'aimantation ($\vec{M} = 0$) et en regroupant les courants liés \vec{J}_b et libres \vec{J}_f avec $\vec{J} = \vec{J}_b + \vec{J}_f$.

En utilisant une stratégie de discrétisation particulière, basée sur l'algorithme de Yee [108], les divergences $\nabla \cdot \vec{E}$ et $\nabla \cdot \vec{H}$ peuvent être forcées à rester nulles et les deux premières équations de Maxwell peuvent être ainsi ignorées. La discrétisation est alors un peu plus complexe, car il faut décaler les champs \vec{E} et \vec{H} d'un demi pas temporel. Ainsi, pour calculer le champ électrique à un n_t ième pas temporel, soit \vec{E}^{n_t} on utilise le champ magnétique au demi pas précédant, soit $\vec{H}^{n_t-1/2}$. Puis, on utilise le champ électrique obtenu au pas n_t afin de calculer le champ magnétique au pas $n_t + 1/2$ et ainsi de suite.

Des décalages spatiaux de demi indices sont aussi utilisés, pour chaque dimension (\hat{x} , \hat{y} et \hat{z} en trois dimensions). De plus, chacune des trois composantes des champs vectoriels \vec{E} et \vec{H} est décalée d'un demi indice par rapport aux autres, tel qu'illustré à la figure 3.3.

Avec ce schéma de discrétisation, l'équation (3.7b) est décomposée en trois équations

$$\epsilon_0 \frac{\partial E_x}{\partial t} = \frac{\partial H_z}{\partial y} - \frac{\partial H_y}{\partial z} - J_x, \quad (3.8a)$$

$$\epsilon_0 \frac{\partial E_y}{\partial t} = \frac{\partial H_x}{\partial z} - \frac{\partial H_z}{\partial x} - J_y, \quad (3.8b)$$

$$\epsilon_0 \frac{\partial E_z}{\partial t} = \frac{\partial H_y}{\partial x} - \frac{\partial H_x}{\partial y} - J_z, \quad (3.8c)$$

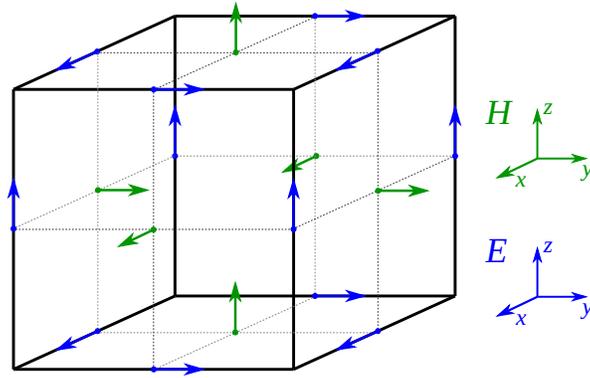


FIGURE 3.3 – Cellule de Yee tridimensionnelle. Chaque flèche représente l'endroit où est défini chaque composante du champ électrique \vec{E} (en bleu) ou magnétique \vec{H} (en vert). L'orientation de chaque flèche indique s'il s'agit de la composante x , y ou z .

qui deviennent

$$\epsilon_0 \frac{E_x|_{i,j+1/2,k+1/2}^{n+1} - E_x|_{i,j+1/2,k+1/2}^n}{\delta_t} = \frac{H_z|_{i,j+1,k+1/2}^{n+1/2} - H_z|_{i,j,k+1/2}^{n+1/2}}{\delta_y} - \frac{H_y|_{i,j+1/2,k+1}^{n+1/2} - H_y|_{i,j+1/2,k}^{n+1/2}}{\delta_z} - J_x|_{i,j+1/2,k+1/2}^n, \quad (3.9a)$$

$$\epsilon_0 \frac{E_y|_{i+1/2,j,k+1/2}^{n+1} - E_y|_{i+1/2,j,k+1/2}^n}{\delta_t} = \frac{H_x|_{i+1/2,j,k+1}^{n+1/2} - H_x|_{i+1/2,j,k}^{n+1/2}}{\delta_z} - \frac{H_z|_{i+1,j,k+1/2}^{n+1/2} - H_z|_{i,j,k+1/2}^{n+1/2}}{\delta_x} - J_y|_{i+1/2,j,k+1/2}^n, \quad (3.9b)$$

$$\epsilon_0 \frac{E_z|_{i+1/2,j+1/2,k}^{n+1} - E_z|_{i+1/2,j+1/2,k}^n}{\delta_t} = \frac{H_y|_{i+1,j+1/2,k}^{n+1/2} - H_y|_{i,j+1/2,k}^{n+1/2}}{\delta_x} - \frac{H_x|_{i+1/2,j+1,k}^{n+1/2} - H_x|_{i+1/2,j,k}^{n+1/2}}{\delta_y} - J_z|_{i+1/2,j+1/2,k}^n. \quad (3.9c)$$

Les trois composantes du champ électrique sont alors obtenues avec

$$E_x|_{i,j+1/2,k+1/2}^{n_t+1} = E_x|_{i,j+1/2,k+1/2}^{n_t} + \frac{\delta_t}{\epsilon_0 \delta_y} \left(H_z|_{i,j+1,k+1/2}^{n_t+1/2} - H_z|_{i,j,k+1/2}^{n_t+1/2} \right) + \frac{\delta_t}{\epsilon_0 \delta_z} \left(H_y|_{i,j+1/2,k+1}^{n_t+1/2} - H_y|_{i,j+1/2,k}^{n_t+1/2} \right) - J_x|_{i,j+1/2,k+1/2}^{n_t}, \quad (3.10a)$$

$$E_y|_{i+1/2,j,k+1/2}^{n_t+1} = E_x|_{i+1/2,j,k+1/2}^{n_t} + \frac{\delta_t}{\epsilon_0 \delta_z} \left(H_x|_{i+1/2,j,k+1}^{n_t+1/2} - H_x|_{i+1/2,j,k}^{n_t+1/2} \right) + \frac{\delta_t}{\epsilon_0 \delta_x} \left(H_z|_{i+1,j,k+1/2}^{n_t+1/2} - H_z|_{i,j,k+1/2}^{n_t+1/2} \right) - J_y|_{i+1/2,j,k+1/2}^{n_t}, \quad (3.10b)$$

$$E_z|_{i+1/2,j+1/2,k}^{n_t+1} = E_x|_{i+1/2,j+1/2,k}^{n_t} + \frac{\delta_t}{\epsilon_0 \delta_x} \left(H_y|_{i+1,j+1/2,k}^{n_t+1/2} - H_y|_{i,j+1/2,k}^{n_t+1/2} \right) + \frac{\delta_t}{\epsilon_0 \delta_y} \left(H_x|_{i+1/2,j+1,k}^{n_t+1/2} - H_x|_{i+1/2,j,k}^{n_t+1/2} \right) - J_z|_{i+1/2,j+1/2,k}^{n_t}. \quad (3.10c)$$

Les composantes du champ magnétique sont obtenues avec

$$H_x|_{i+1/2,j,k}^{n_t+1/2} = H_x|_{i+1/2,j,k}^{n_t-1/2} - \frac{\delta_t}{\mu_0 \delta_y} \left(E_z|_{i+1/2,j+1/2,k}^{n_t} - E_z|_{i+1/2,j-1/2,k}^{n_t} \right) + \frac{\delta_t}{\mu_0 \delta_z} \left(E_y|_{i+1/2,j,k+1/2}^{n_t} - E_y|_{i+1/2,j,k-1/2}^{n_t} \right), \quad (3.11a)$$

$$H_y|_{i,j+1/2,k}^{n_t+1/2} = H_y|_{i,j+1/2,k}^{n_t-1/2} - \frac{\delta_t}{\mu_0 \delta_z} \left(E_x|_{i,j+1/2,k+1/2}^{n_t} - E_x|_{i,j+1/2,k-1/2}^{n_t} \right) + \frac{\delta_t}{\mu_0 \delta_x} \left(E_z|_{i+1/2,j+1/2,k}^{n_t} - E_z|_{i-1/2,j+1/2,k}^{n_t} \right), \quad (3.11b)$$

$$H_z|_{i,j,k+1/2}^{n_t+1/2} = H_z|_{i,j,k+1/2}^{n_t-1/2} - \frac{\delta_t}{\mu_0 \delta_x} \left(E_y|_{i+1/2,j,k+1/2}^{n_t} - E_y|_{i-1/2,j,k+1/2}^{n_t} \right) + \frac{\delta_t}{\mu_0 \delta_y} \left(E_x|_{i,j+1/2,k+1/2}^{n_t} - E_x|_{i,j-1/2,k+1/2}^{n_t} \right). \quad (3.11c)$$

3.2.1 Stabilité numérique

Une précision sur la stabilité numérique de la méthode FDTD est à mentionner. La lumière se propage à la vitesse de la lumière c . En une dimension, si le pas temporel δ_t est plus grand que δ_x/c , cela veut dire qu'une onde électromagnétique va parcourir plus d'une cellule par pas temporel. Cette situation cause des instabilités numériques importantes et va presque certainement mener à une explosion des résultats vers des valeurs infinies. Le pas temporel est alors contraint sous une valeur maximale qui dépend de la taille des pas spatiaux. En trois dimensions, la condition de stabilité est [96]

$$\delta_t < \frac{1}{c} \left[\frac{1}{\delta_x^2} + \frac{1}{\delta_y^2} + \frac{1}{\delta_z^2} \right]^{-1/2}. \quad (3.12)$$

3.2.2 Discrétisation du modèle de Lorentz

Une technique novatrice permettant de calculer explicitement la réponse du matériau aux champs qui inclut les non-linéarités a été développée dans [103] et est basée sur l'approche théorique de [102].

Les équations (3.7a) et (3.7b) discrétisées sont

$$H^{n_t+\frac{1}{2}} = H^{n_t-\frac{1}{2}} - \frac{\delta_t}{\mu_0} (\nabla \times E^{n_t}), \quad (3.13a)$$

$$E^{n_t+1} = E^{n_t} + \frac{\delta_t}{\epsilon_0} \left(\nabla \times H^{n_t+\frac{1}{2}} - J_b^{n_t+\frac{1}{2}} \right), \quad (3.13b)$$

où $\vec{J}_b = \partial \vec{P} / \partial t$ est la densité de courants due aux électrons liés. On a ignoré l'aimantation \vec{M} , les courants libres \vec{J}_f , puis omis les dimensions spatiales. La réponse du matériau est déterminée avec

$$J_b^{n_t+\frac{1}{2}} = \frac{1 - \Gamma_b}{1 + \Gamma_b} J^{n_t-\frac{1}{2}} + \frac{\omega_0 \delta_t}{1 + \Gamma_b} (\underline{P}^{n_t} - P^{n_t}), \quad (3.14a)$$

$$P^{n_t+1} = P^{n_t} + \delta_t J_b^{n_t+\frac{1}{2}}, \quad (3.14b)$$

où $\underline{P}^{n_t} = \epsilon_0 [\chi^{(1)} E^{n_t} + \chi^{(2)} (E^{n_t})^2 + \chi^{(3)} (E^{n_t})^3 + \dots]$ et $\Gamma_b = \gamma_b \delta_t / 2$. L'amortissement des électrons liés γ_b et la fréquence de résonance ω_0 permettent de décrire la relation de dispersion (la relation entre l'indice de réfraction et la fréquence du champ électrique). Si l'on souhaite ignorer les effets de la dispersion, il suffit de poser $\gamma_b = 0$ et de choisir une valeur de ω_0 éloignée de ω . C'est ce qui est fait dans les chapitres suivants.

L'avantage de la formulation des équations (3.14) est que l'on peut calculer les différentes quantités avec uniquement des valeurs déjà calculées provenant des itérations précédentes. Quand ce n'est pas le cas, la formulation est implicite et on doit ajouter une autre méthode itérative au sein de cette méthode, elle-même itérative, multipliant ainsi le temps de calcul.

3.2.3 Discrétisation du modèle de Drude

L'équation différentielle décrivant les courants libres, selon le modèle de Drude, a été présentée à la section 1.4 [voir l'équation (1.30a)]. Sa discrétisation peut être très simple, avec

$$\frac{J_f^{n_t+1} - J_f^{n_t}}{\delta_t} = -\gamma J_f^{n_t} + \epsilon_0 \omega_p^2 E^{n_t}, \quad (3.15a)$$

$$J_f^{n_t+1} = J_f^{n_t} (1 - \gamma \delta_t) + \delta_t \epsilon_0 \omega_p^2 E^{n_t}. \quad (3.15b)$$

Ce schéma d'intégration est bien pratique, car il est explicite et ne dépend que de quantités déjà connues ($J_f^{n_t}$ et E^{n_t}). Toutefois, on peut trouver un schéma un peu plus précis et stable qui est également explicite.

Avec le schéma de l'équation (3.15b), le terme d'amortissement est évalué au temps correspondant au début du pas temporel (indice n_t) et conserve cette valeur jusqu'au pas suivant (indice $n_t + 1$). Avec une meilleure stratégie, on peut évaluer ce terme d'amortissement au milieu du pas temporel (indice $n_t + 1/2$, en interpolant le terme à partir de ses valeurs aux indices n_t et $n_t + 1$), avec le schéma

$$\frac{J_f^{n_t+1} - J_f^{n_t}}{\delta_t} = -\gamma \frac{J_f^{n_t+1} + J_f^{n_t}}{2} + \epsilon_0 \omega_p^2 E^{n_t}, \quad (3.16a)$$

$$J_f^{n_t+1} = J_f^{n_t} \left(\frac{1 - \Gamma_f}{1 + \Gamma_f} \right) + \frac{\delta_t \epsilon_0 \omega_p^2 E^{n_t}}{1 + \Gamma_f}, \quad (3.16b)$$

avec $\Gamma_f = \gamma \delta_t / 2$.

On peut remarquer que le champ électrique n'est évalué qu'au début du pas temporel et n'a pas bénéficié du même traitement. Bien que c'est possible, on ne peut pas obtenir un schéma d'intégration explicite ainsi et un schéma implicite serait considérablement plus lent à intégrer dans ce cas-ci.

3.3 Simulation d'une interaction entre une impulsion laser et un diélectrique

À partir des ingrédients présentés à la section précédente, on peut tenter de simuler l'interaction entre une impulsion laser et un diélectrique, tel qu'il a été fait pour la figure 1.5. Le but de cette expérience est de constater qu'il manque encore quelques ajustements avant de reproduire les résultats obtenus à ce moment-là.

On commence par définir un domaine de simulation unidimensionnel de $20 \mu\text{m}$ de longueur, avec un milieu diélectrique ayant un indice de réfraction de $n = 1.5$ situé à $x > 10 \mu\text{m}$. On discrétise l'espace en 500 cellules, ce qui résulte en un pas de $\delta_x = 40 \text{ nm}$. Une bonne règle d'or afin de choisir la finesse de discrétisation est d'avoir au moins 10 cellules par longueur d'onde, considérant la plus petite longueur d'onde présente dans la simulation. Avec une source laser à 800 nm et un indice de réfraction de 1.5 , la plus petite longueur d'onde attendue d'un peu plus de 500 nm et on a alors au moins 13 pas par longueur d'onde.

La figure 3.4 montre ce que l'on obtient si on ne fait que naïvement injecter une impulsion laser gaussienne (d'amplitude $E_0 = 1$) de la forme

$$E_L^{n_t} = \exp \left[-2 \ln(2) \left(\frac{n_t \delta_t}{\tau} \right)^2 \right] \cos(\omega n_t \delta_t), \quad (3.17)$$

en forçant

$$E_{i_L}^{n_t} = E_L^{n_t+1/2}, \quad (3.18)$$

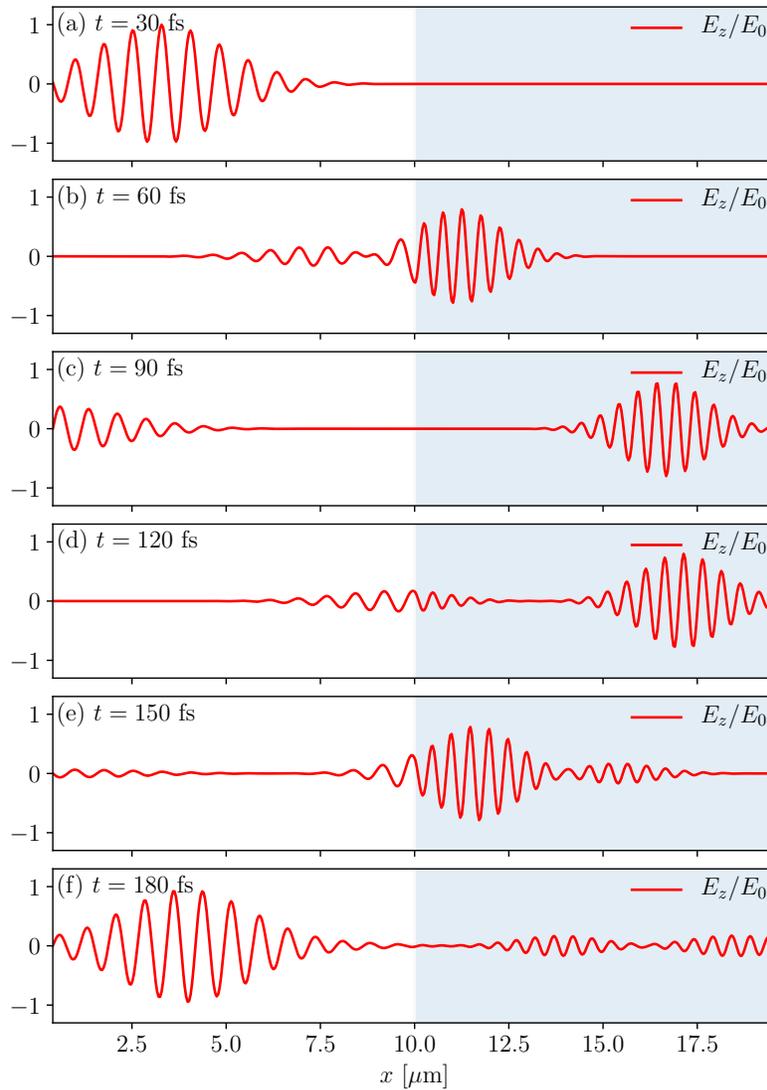


FIGURE 3.4 – Une impulsion laser interagissant avec un diélectrique (indiqué en bleu). L'absence de conditions frontières réalistes causent des réflexions non physiques aux extrémités du domaine de simulation ($x = 0$ et $x = 20 \mu\text{m}$). La durée de l'impulsion est $\tau = 10$ fs et la longueur d'onde est $\lambda = 800$ nm.

avec une durée d'impulsion τ et une fréquence angulaire $\omega = 2\pi c/\lambda$ (où λ est la longueur d'onde). L'indice i_L indique l'indice de la cellule à la position de la source laser.

Analysant la figure 3.4, on observe que les quelques premières dizaines de femtosecondes se comportent normalement. L'impulsion laser est injectée à $x = 0$ et se propage dans la direction $+x$ [voir la figure 3.4(a)]. Une grande partie de l'impulsion est transmise dans le

PyPlasma 3.1: Réflexions non physiques

script complet : `pyplasma/examples/capsules/3.1_non_physical_reflections.py`

Afin de reproduire la figure 3.4, il faut cette fois créer un domaine de simulation qui a une dimension spatiale, tel que :

```
domain = Domain(grid=[500], size=[20*um])
```

Le domaine fait alors $20 \mu\text{m}$ de long et est discrétisé en 500 points discrets.

Puis, on crée un laser que l'on ajoute au domaine ainsi :

```
laser = Laser(wavelength=800*nm, pulse_duration=10*fs, t0=20*fs,
              E0=1, phase=True)
domain.add_laser(laser, source_mode='hard')
```

milieu diélectrique et le reste est réfléchi [voir la figure 3.4(b)]. C'est à partir de $t \sim 90$ fs que les choses se gâtent, quand les parties réfléchie et transmise atteignent les limites du domaine de simulation. Puisque ces frontières ne sont pas de réelles entités physiques, on souhaiterait qu'une impulsion laser ne fasse que continuer sa propagation, puis sorte du domaine de simulation. Toutefois, la frontière de cette simulation agit comme une barrière infranchissable, similaire à ce que serait un milieu métallique parfaitement conducteur. En conséquence, l'impulsion est entièrement réfléchi et reste emprisonnée dans le domaine de simulation. C'est ce que l'on observe dans les figures 3.4(d) à 3.4(f) où les parties réfléchi et transmise sont renvoyées vers la surface du diélectrique, sont à nouveau divisées en parties réfléchies et transmises et ainsi de suite.

Il est alors nécessaire d'ajuster le comportement des champs électromagnétiques aux frontières du domaine de simulation.

3.3.1 Conditions frontières

Les extrémités du domaine de simulation n'existent pas dans le contexte des phénomènes que l'on souhaite étudier. On veut alors reproduire le comportement des ondes électromagnétiques si aucune frontière n'était présente. Une solution serait d'utiliser un domaine suffisamment grand afin que l'impulsion laser n'ait pas le temps d'atteindre une frontière pour toute la durée de la simulation. Évidemment, ceci requiert plus de ressources computationnelles, peut rapidement devenir déraisonnable et de bien meilleures solutions ont été développées.

Les *conditions frontières* les plus communes pour la méthode FDTD sont des couches absorbantes parfaitement adaptées (*perfectly matched layers* ou PMLs). Le principe est d'introduire

une région aux extrémités du domaine où le milieu est à la fois non réfléchissant et très absorbant. Ainsi, une onde électromagnétique incidente à cette région est entièrement transmise, ce qui prévient le problème des réflexions non physiques. Puis, l'onde doit être entièrement absorbée avant d'atteindre la fin de cette région artificielle au risque de subir une réflexion à cet endroit et de retourner vers le domaine de simulation. Si toute l'énergie est bien absorbée dans les PMLs, cela donne bien l'illusion que l'onde a simplement continué son chemin et est partie vers l'infini sans se réfléchir sur une frontière inexistante.

Normalement, un milieu optique ne peut être à la fois absorbant et non réfléchissant, c'est pourquoi les PMLs n'ont pas d'analogie réel. Il faut alors artificiellement manipuler les champs électriques et magnétiques afin d'obtenir ce comportement. Une description théorique est disponible dans [49]. Pour une simulation uni-dimensionnelle, il s'agit de manipuler les dérivées spatiales des équations de Maxwell, tel que

$$\frac{\partial}{\partial x} \rightarrow \frac{1}{1 + i\frac{\sigma(x)}{\omega}} \frac{\partial}{\partial x}, \quad (3.19)$$

où $\sigma = 0$ hors des PMLs et est une fonction arbitraire de x respectant $\sigma > 0$ dans les PMLs. En choisissant stratégiquement la fonction $\sigma(x)$, on peut graduellement transformer une onde oscillante en une onde évanescence. Un choix commun est une fonction pour laquelle $\sigma = 0$ à l'interface entre le domaine de simulation et les PMLs, puis croît proportionnellement à x^3 jusqu'à la fin des PMLs. Si on ajoute une telle région aux deux extrémités du domaine de la simulation précédente, on obtient les résultats de la figure 3.5 (la source laser est injectée à l'interface entre les PMLs et le domaine de simulation, plutôt qu'à $x = 0$).

PyPlasma 3.2: Conditions frontières

script complet : `pyplasma/examples/capsules/3.2_boundary_conditions.py`

Les conditions frontières utilisées pour la figure 3.5 sont ajoutées avec le dernier paramètre de :

```
domain = Domain(grid=[500], size=[20*um], pml_width=3200*nm)
```

À la figure 3.5, on voit toujours l'impulsion laser (a) être transmise dans le milieu diélectrique (b), puis atteindre les PMLs à la limite supérieure de x . À la figure 3.5(c), on voit deux impulsions. Celle de droite est la partie de l'impulsion transmise dans le diélectrique, puis dans les PMLs où elle est absorbée. Les PMLs à la limite supérieure de x fonctionnent alors correctement. Toutefois, on a encore un problème, car la partie de l'impulsion qui a été réfléchiée à la surface du diélectrique [voir l'onde à $x < 10 \mu\text{m}$ pour la figure 3.5(b)] a ensuite été réfléchiée

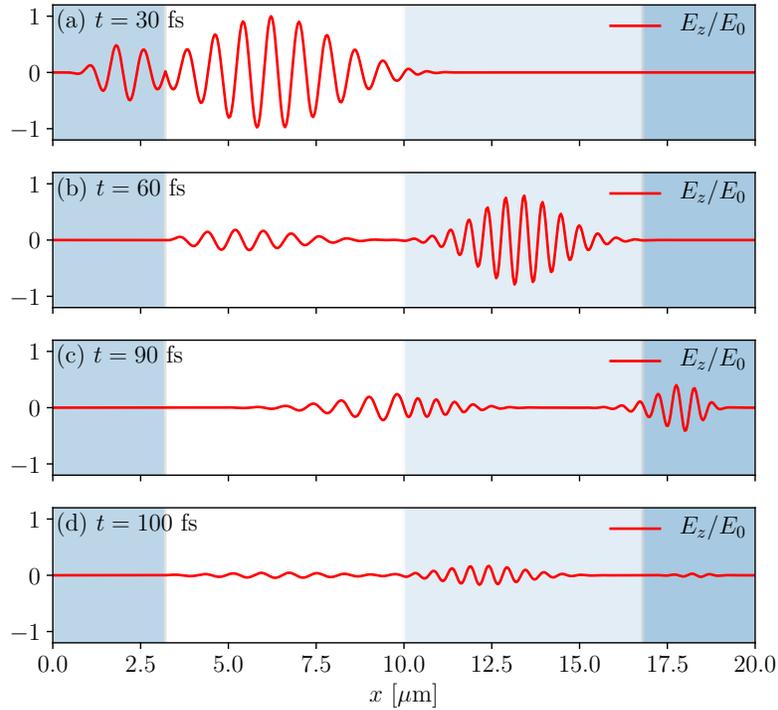


FIGURE 3.5 – Une impulsion laser interagissant avec un diélectrique (indiqué en bleu clair). Des PMLs sont présentes aux deux extrémités du domaine (indiquées en bleu foncé). Les réflexions indésirables à l’extrémité de droite ($x = 16.8 \mu\text{m}$) sont bien éliminées, mais sont toujours présentes à l’extrémité de gauche ($x = 3.2 \mu\text{m}$), à cause de la méthode d’implémentation de la source laser [voir l’équation (3.18)]. La durée de l’impulsion est $\tau = 10 \text{ fs}$ et la longueur d’onde est $\lambda = 800 \text{ nm}$.

à nouveau avant d’entrer dans les PMLs de la limite inférieure de x . C’est pourquoi il reste toujours des oscillations à la fin de la simulation [voir la figure 3.5(d)].

Le problème ici n’est pas les PMLs, mais bien la façon dont on injecte la source lumineuse dans la simulation. Ce problème est abordé à la section 3.3.2.

3.3.2 Source laser transparente

En forçant le champ électromagnétique de la façon décrite par l’équation (3.18) afin d’injecter l’impulsion laser dans la simulation, on a également introduit un mur infranchissable pour les ondes électromagnétiques incidentes à la position de cette source. Les réflexions indésirables observées à la figure 3.5 sont donc dues à une réflexion contre la source électromagnétique elle-même. C’est alors une autre forme de réflexions non physiques qu’il faut éliminer, car on suppose que l’impulsion laser que l’on souhaite simuler provienne en réalité de $x = -\infty$ et que rien de spécial n’est présent là où l’impulsion est artificiellement injectée.

Une façon de rendre la source transparente est d'utiliser une méthode additive, soit en ajoutant le champ électrique de la source au champ déjà présent. Suivant l'implémentation de [84], une source additive est injectée avec l'équation

$$E_{i_L}^{n_t+1} = E_{i_L}^{n_t} + 2 \frac{c\delta_t}{\delta_x} E_L^{n_t+1/2}. \quad (3.20)$$

Avant d'implémenter cette nouvelle source, on peut y faire un dernier ajustement. Autant pour la source forcée [équation (3.18)] que la source additive [équation (3.20)], la source est injectée à une cellule bien précise, à l'indice i_L , puis est libre de se propager dans n'importe quelle direction. Ceci explique d'ailleurs le facteur 2 que l'on a ajouté devant le deuxième terme de l'équation (3.20), car la moitié de l'énergie est envoyée dans la mauvaise direction, ce qui doit être compensé. On peut voir à la figure 3.5(a) que l'impulsion laser se dirige vers le diélectrique ($+\hat{x}$), mais également vers les PMLs de gauche ($-\hat{x}$). Ça n'est pas vraiment un problème dans ce cas précis, car les PMLs absorbent cette impulsion sortante. On peut quand même, optionnellement, effectuer une correction qui forcera l'impulsion injectée à se propager que dans la direction désirée.

Une telle source, (*total field / scattered field* ou TFSF) est implémentée avec [84]

$$E_{i_L}^{n_t+1} = E_{i_L}^{n_t} + \frac{c\delta_t}{\delta_x} E_L^{n_t+1/2}, \quad (3.21a)$$

$$H_{i_L-1/2}^{n_t+3/2} = H_{i_L-1/2}^{n_t+1/2} - \frac{\delta_t}{\mu_0\delta_x} E_L^{n_t}. \quad (3.21b)$$

La deuxième équation permet ainsi de supprimer la contribution de la source de champ électrique au champ magnétique à l'indice $i_L - 1/2$. Ceci bloque la propagation de la source pour $i < i_L$, car le champ magnétique n'est plus affecté par cette source. Utilisant cette méthode afin d'injecter l'impulsion laser, on obtient la figure 3.6.

Cette fois, les réflexions non physiques ont toutes été éliminées [voir la figure 3.6(d) où les parties réfléchies et transmises de l'impulsion sont toutes les deux sorties du domaine de simulation]. On constate également que la méthode TFSF a bien empêché la propagation de la source dans la direction $-\hat{x}$ [voir la figure 3.6(a) où l'impulsion se propage uniquement vers le diélectrique et plus vers les PMLs].

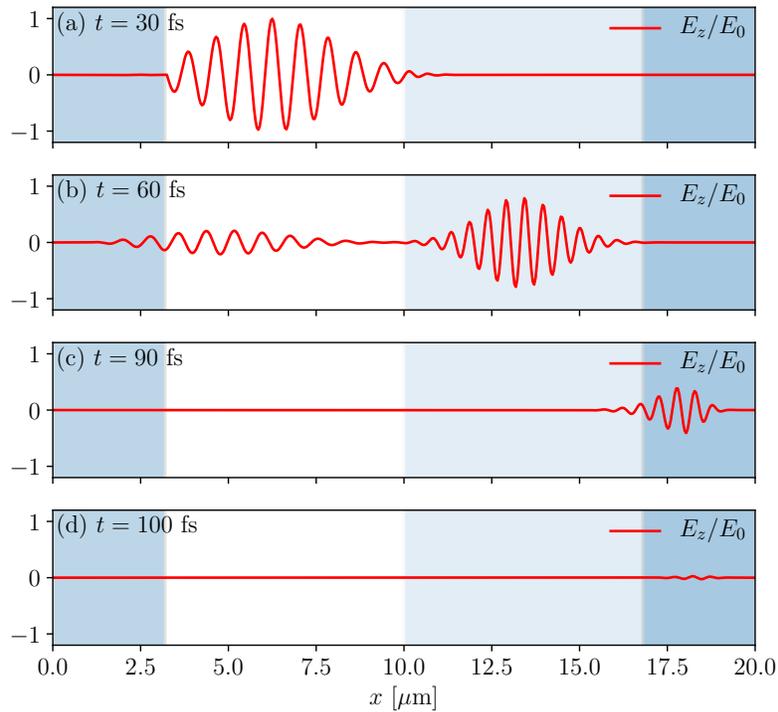


FIGURE 3.6 – Une impulsion laser interagissant avec un diélectrique (indiqué en bleu clair). Des PMLs sont présentes aux deux extrémités du domaine (indiquées en bleu foncé). Les réflexions indésirables à l’endroit où est injectée la source laser ($x = 3.2 \mu\text{m}$) ne sont plus présentes grâce à l’implémentation du source transparente [voir l’équation (3.20)]. Si on retire les régions des PMLs (en bleu foncé) de la visualisation des résultats, on obtient le comportement désiré, soit l’illusion qu’une impulsion laser arrive de $x = -\infty$, interagît avec la surface du diélectrique, puis la partie réfléchie retourne vers $x = -\infty$ tandis que la partie transmise continue vers $x = +\infty$. Les parties réfléchie et transmise ne sont pas affectées par la présence de frontières au domaine de simulation. La durée de l’impulsion est $\tau = 10 \text{ fs}$ et la longueur d’onde est $\lambda = 800 \text{ nm}$.

PyPlasma 3.3: Source transparente

script complet : `pyplasma/examples/capsules/3.3_transparent_source.py`

La figure 3.6 est reproduite en ajoutant le laser au domaine de simulation avec :

```
domain.add_laser(laser, source_mode='tfsf')
```

Chapitre 4

Interférences électromagnétiques de surface

Certains propos et résultats de ce chapitre s'appuient en partie sur la littérature et sur des publications originales antérieures à ce projet de doctorat [30, 31]. La section 4.5 comprend des résultats exclusifs à cette thèse, puis la section 4.6 présente les résultats des simulations numériques originales publiées dans [33].

4.1 Motivation

Au cours des premiers chapitres, un éventail appréciable d'outils ont été présentés afin d'étudier les interactions entre un champ électromagnétique et un milieu solide. Certains provenant de la littérature, bien connus, acceptés et fréquemment utilisés dans la communauté scientifique et d'autres développés dans le cadre des travaux présentés dans cet ouvrage.

À partir de ce chapitre, ces outils seront mis en pratique afin de simuler et étudier une famille de phénomènes qui résultent dans la formation de nanostructures bien particulières aux caractéristiques variées. On parlera de structures périodiques de surface induites par laser, librement traduit de *laser-induced periodic surface structures* (LIPSS). On les appellera à l'occasion des réseaux de surface également.

Ces nanostructures ont un bon nombre d'applications industrielles, car elles permettent de modifier les propriétés optiques ou mécaniques de pratiquement n'importe quelle surface solide [9]. Par exemple, en formant des réseaux de surface d'une façon bien précise, on peut rendre une surface complètement imperméable (super-hydrophobe) [43, 4]. De nombreuses applications potentielles sont également activement étudiées. Par exemple, les nanostructures pouvant être formées à la surface et sous la surface de matériaux transparents promettent

une intégration très efficace de canaux photoniques ou fluidiques bi- ou tridimensionnels [97, 36, 98, 72, 62, 61].

La compréhension des mécanismes de formation des LIPSS permet de mieux contrôler leurs propriétés et d'optimiser les processus de fabrication à grande échelle. Bien que les modèles théoriques et numériques ont fait beaucoup de progrès depuis une vingtaine d'années, il reste encore beaucoup de zones grises. Dans ce chapitre, on aborde ce qui a été appris des réseaux de surface à partir de modèles centrés sur les interactions électromagnétiques entre une source laser et une surface solide. On termine avec deux contributions originales s'appuyant sur des variations de ces modèles purement électromagnétiques.

4.2 Introduction aux réseaux de surface

Les réseaux de surface, dont la première démonstration expérimentale provient de [8], sont des nanostructures périodiques qui apparaissent à la surface d'un matériau après qu'il eut été irradié par une source laser dans des conditions spécifiques. La nature du matériau n'a que peu d'importance quant à la possibilité de voir de telles structures se former [100], mais peut grandement affecter leurs caractéristiques morphologiques [109]. Les deux caractéristiques principales qui sont utilisées afin de décrire les LIPSS sont leur périodicité Λ et leur orientation. Par exemple, les réseaux de surface qui apparaissent à la surface d'un matériau très absorbant, tel un métal, après avoir été irradié par un laser, sont la plupart du temps orientés perpendiculairement par rapport aux structures obtenues pour un matériau transparent et ont une périodicité plus grande.

En plus de la nature du matériau ciblé, les caractéristiques du laser employé sont elles aussi déterminantes pour la morphologie des LIPSS. La longueur d'onde λ , l'intensité I , l'angle d'incidence θ , la durée d'impulsion τ et la polarisation sont tous des facteurs importants. La formation des réseaux de surface peut également se faire graduellement en exposant une surface à un train d'impulsions, menant à des morphologies différentes. Bref, on a affaire à un phénomène très riche.

La première grande percée dans l'étude théorique de la formation des réseaux de surface provient de Sipe *et al.* [88]. Ces travaux fondateurs ont apporté une description théorique, appuyée de solutions analytiques, du comportement d'une onde électromagnétique incidente interagissant avec une surface rugueuse qui s'accorde sur plusieurs aspects des résultats expérimentaux [110, 87].

On verra dans les prochaines sections, que la rugosité de surface joue un rôle central dans l'initiation du processus de formation des LIPSS. Les patrons d'interférence provenant des différents types d'ondes pouvant être diffusées par des défauts de surface prédits par cette

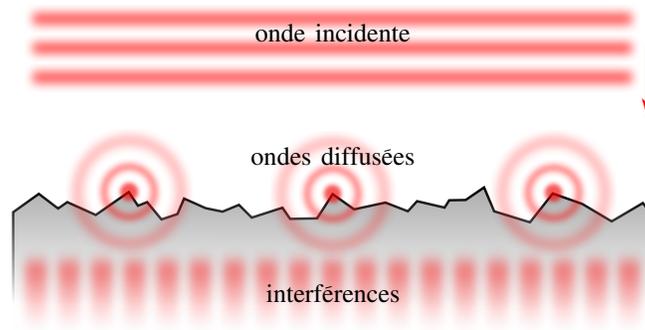


FIGURE 4.1 – L’onde incidente est diffusée par les irrégularités d’une surface rugueuse. Les interférences entre l’onde incidente et les ondes diffusées causent un patron d’interférence pouvant expliquer comment est initié le processus de formation des réseaux de surface, selon la théorie de Sipe.

théorie sont présentés à la section 4.3. Une approche numérique est ensuite décrite à la section 4.4 où on pourra comparer les deux méthodes (numérique et analytique) dans les limites de validité des solutions analytiques. On pourra ensuite explorer numériquement des régions de paramètres au-delà de ces limites aux sections 4.5 et 4.6.

4.3 Patrons d’interférence du modèle de Sipe

Au début des années 80, certaines théories commençaient à apparaître dans la littérature afin de décrire la formation des réseaux de surface, mais ne pouvaient expliquer toutes les caractéristiques connues du phénomène. Aucune ne pouvait expliquer à la fois l’orientation, la période et la dépendance de cette période avec l’angle d’incidence du laser. Il a fallu attendre le modèle de Sipe [88] qui a solutionné les équations de Maxwell analytiquement pour une onde plane interagissant avec une surface rugueuse dans l’espace des fréquences pour avoir une explication théorique convaincante.

Connaissant la dépendance entre les LIPSS, la longueur d’onde et le sens de polarisation du laser incident, il était naturel d’aborder le problème d’un point de vue électromagnétique. L’hypothèse initiale est qu’une onde plane incidente à une surface doit subir une brisure de symétrie afin de permettre des variations dans le profil d’énergie lumineuse le long de la surface et ainsi, causer une distribution d’énergie inhomogène. Ce sont ces variations d’énergie qui seraient inscrites à la surface du matériau irradié. Une représentation du phénomène est illustrée à la figure 4.1.

Les solutions analytiques complètes obtenues par Sipe *et al.* sont présentées à l’annexe A. En résumé, il est démontré que l’intensité lumineuse I sous une surface solide rugueuse est

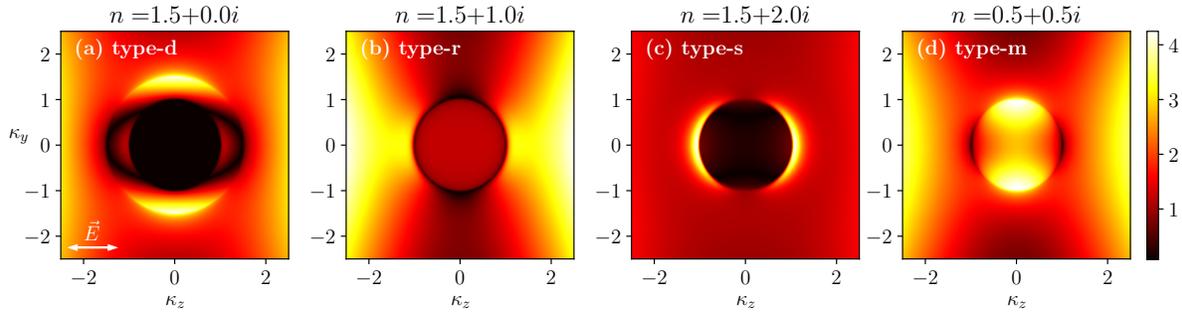


FIGURE 4.2 – Fonction d’efficacité η pour différents indices de réfraction complexes. La polarisation du laser est le long de l’axe z et l’incidence est normale (axe x). (a) L’indice de réfraction est purement réel et le comportement de type-d domine. (b) Il y a un peu d’absorption et le comportement de type-r domine. (c) Le matériau est très absorbant et le comportement de type-s domine. (d) Dans certaines conditions, un matériau fortement irradié peut avoir les parties réelle et imaginaire de son indice de réfraction sous l’unité et le comportement de type-m domine.

proportionnelle à la fonction d’efficacité $\eta(\vec{k}; \vec{k}_i)$, tel que

$$I(\vec{k}) \propto \eta(\vec{k}; \vec{k}_i) |b(\vec{k})|, \quad (4.1)$$

où $|b(\vec{k})|$ est l’amplitude de la transformée de Fourier de la forme de la rugosité de surface. Si la position de la surface est parfaitement aléatoire, sans fréquence préférentielle, il s’agit d’une constante que l’on peut ignorer, puisqu’on a affaire à une relation de proportionnalité.

Les solutions sont exprimées en fonction du vecteur d’onde \vec{k} . Le vecteur d’onde du laser incident est \vec{k}_i . À incidence normale, les solutions se simplifient et peuvent s’exprimer exclusivement en fonction du vecteur d’onde normalisé

$$\vec{\kappa} = \frac{\vec{k}}{|\vec{k}_i|} = \vec{k} \frac{\lambda}{2\pi}. \quad (4.2)$$

On se concentrera dès maintenant uniquement aux solutions à incidence normale à la surface irradiée. Certaines de ces solutions sont présentées à la figure 4.2, pour différents indices de réfraction. On y observe des types de comportements très différents.

Une exploration plus exhaustive révèle que les solutions analytiques de la fonction d’efficacité η est généralement une combinaison des trois types de comportements suivants :

- **type-d** : [Voir la figure 4.2(a)] Le comportement de type-d (provenant de *dissident*, à cause de la « dissidence » qu’a ce comportement d’être différent du comportement de type-s, mieux connu à l’époque) est principalement observé à la surface de matériaux transparents, donc peu absorbants. Leur orientation est parallèle (\parallel) à la polarisation du laser et leur périodicité est $\Lambda_{\parallel} \sim \lambda/n$. Ce comportement a été associé à un phénomène d’interférence en champ lointain dans [112].

- **type-r** : [Voir la figure 4.2(b)] Le comportement de type-r (provenant de *roughness*, à cause de leur relation de proximité avec la rugosité de surface) peut également être observé sur presque tous les matériaux. Leur orientation est perpendiculaire (\perp) à la polarisation du laser et leur périodicité est $\Lambda_{\perp} \ll \lambda$. Ce comportement a été associé à un phénomène d'interférence en champ proche dans [112].
- **type-s** : [Voir la figure 4.2(c)] Le comportement de type-s (provenant de *sinusoidal*, à cause de la relation sinusoidale entre leur périodicité et l'angle d'incidence du laser) peut être observé sur presque tous les matériaux, mais principalement les plus absorbants, comme les métaux ou les semi-conducteurs. Leur orientation est perpendiculaire (\perp) à la polarisation du laser et leur périodicité est $\Lambda_{\perp} \sim \lambda$. Ce comportement a été associé à l'interférence entre l'onde plane incidente et des ondelettes piégées à la surface (*surface plasmon polaritons* ou SPP) [11].

On peut également mentionner un quatrième comportement qui a été décrit dans une contribution originale [30] :

- **type-m** : [Voir la figure 4.2(d)] Le comportement de type-m (provenant de *mixed*, à cause de leurs propriétés ressemblant à un mélange entre celles des comportements de type-d et de type-s). Leur orientation est parallèle (\parallel) à la polarisation du laser et leur périodicité est $\Lambda_{\parallel} \sim \lambda$.

En résumé, la théorie de Sipe prédit que l'intensité d'une source lumineuse incidente à une surface rugueuse peut interférer avec les ondes diffusées par les inhomogénéités de surface. Les patrons d'interférence sont proportionnels, dans l'espace de Fourier, à la fonction d'efficacité. En fonction des propriétés optiques du matériau, un certain nombre de comportements qualitativement distincts peuvent être classifiés dans différentes familles. Ces patrons d'interférence causent une déposition périodique de l'énergie lumineuse sous la surface du matériau, ce qui peut initier la formation de réseaux de surface ayant une orientation et une périodicité similaires à celles du patron d'interférence.

Toutefois, les solutions analytiques du modèle de Sipe sont soumises à un certain nombre de contraintes. L'amplitude de la rugosité de surface doit être très petite par rapport à la longueur d'onde du laser, ce qui empêche d'étudier la formation des LIPSS lors d'une exposition à plusieurs impulsions laser. Dans un tel cas, la forme de la surface est graduellement modifiée d'une impulsion à la suivante et cette condition est rapidement brisée. Ensuite, le domaine de validité des solutions est restreint aux basses fréquences, pour éviter d'obtenir des divergences dans le traitement théorique. Finalement, les solutions ne peuvent être obtenues ailleurs que directement sous la surface rugueuse et non en profondeur dans le matériau.

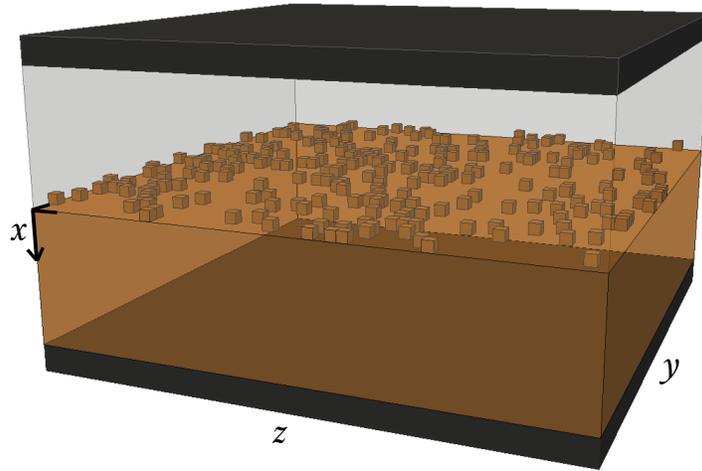


FIGURE 4.3 – Géométrie du domaine d'intégration pour l'équivalent numérique du modèle de Sipe. Les bandes noires représentent les PMLs (conditions frontières absorbantes). En gris clair est représenté de l'espace vide. En orange, le matériau sur lequel il y a des inhomogénéités de surface.

4.4 Affranchissement des contraintes de Sipe par intégration numérique

Les contraintes auxquelles sont soumises les solutions analytiques du modèle de Sipe peuvent être surmontées grâce à une méthode numérique telle que la méthode FDTD introduite au chapitre 3. Ceci a été fait pour la première fois par Skolski *et al.* [90]. Un bon point de départ afin de vérifier la validité de l'approche numérique est d'effectuer l'intégration numérique sous les mêmes contraintes des solutions analytiques, permettant ainsi une comparaison directe entre les deux méthodes.

La recette de la méthode numérique va comme suit. On définit un domaine de simulation tridimensionnel tel qu'illustré à la figure 4.3. Ce domaine comprend un milieu optique séparé en trois régions. Le volume du matériau solide, du vide et la surface rugueuse du matériau qui sépare les deux premières régions. Pour l'instant, la rugosité de surface est modélisée simplement par un ensemble d'inhomogénéités de surface individuelles distribuées aléatoirement sur la surface du matériau. En pratique, une fraction f donnée des cellules computationnelles vides qui sont en contact avec la surface du matériau sont remplies par ce même matériau. Si la hauteur de ces inhomogénéités est notée par r_a et la surface plane est à la position 0, la position de la surface rugueuse suit ainsi une fonction binaire, avec une probabilité f d'être à la valeur r_a et avec une probabilité $1 - f$ d'être à la valeur 0. Dans cette section, on utilise $r_a = 40$ nm et $f = 0.1$. D'autres fonctions plus complexes sont explorées à la section 4.5, soient du bruit blanc, du bruit de Perlin et une fonction fractale.

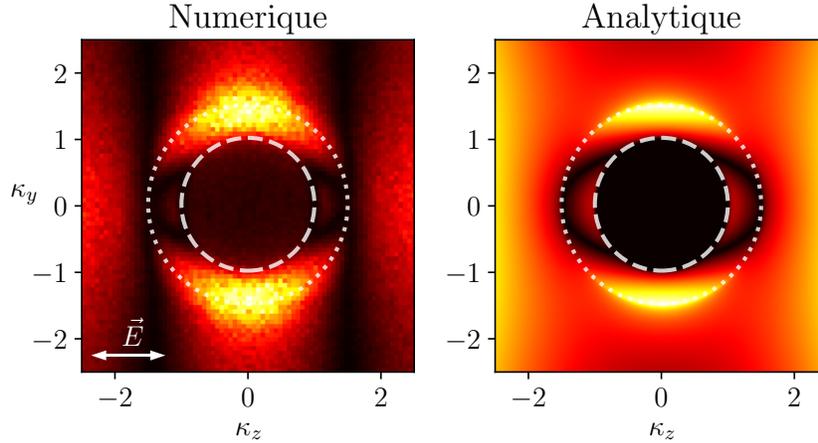


FIGURE 4.4 – Fonction d’efficacité η pour un matériau dont l’indice de réfraction est $n = 1.5 + 0i$, présentant un comportement de type-d. À gauche, la solution a été obtenue numériquement. Le bruit dans la solution numérique a été amoindri en effectuant le même calcul 50 fois et en moyennant les solutions. À droite, la solution a été obtenue analytiquement avec le modèle de Sipe. Le cercle interne indique $|\vec{\kappa}| = 1$ et le cercle externe représente $|\vec{\kappa}| = \text{Re}(n)$.

À la frontière entre les PMLs et le vide (voir la figure 4.3), une source lumineuse de la forme décrite par l’équation (3.17) est introduite avec la méthode présentée à la section 3.3.2. L’impulsion gaussienne résultante (durée d’impulsion $\tau = 10$ fs et amplitude arbitraire), lors de l’intégration numérique, se propage alors en direction de la surface rugueuse et est transmise dans le matériau. La mesure effectuée est l’intensité moyenne sur toute la durée de l’interaction, directement à la surface, sous les inhomogénéités, tel que

$$I_{\text{moy}} = \frac{\sum_{n_t=0}^{N_t} |\vec{E}_{x=0}^{n_t}|^2}{N_t}, \quad (4.3)$$

où I_{moy} est l’intensité moyenne en unité arbitraire. L’intégration temporelle est effectuée sur un nombre total de N_t itérations [déterminé à partir de la condition de stabilité numérique (3.12)].

On se rappelle que l’objectif est de comparer les résultats de cette intégration numérique avec les prédictions analytiques de la théorie de Sipe et que ces prédictions sont en fait la fonction d’efficacité η . Puisqu’il s’agit d’une relation de proportionnalité, on peut simplement écrire $\eta_{\text{num}} \propto I_{\text{moy}}$ et comparer la fonction d’efficacité obtenue numériquement η_{num} avec la fonction d’efficacité analytique η . La dernière étape, avant de pouvoir faire cette comparaison, est de faire la transformée de Fourier de la solution numérique, car les prédictions de la théorie de Sipe sont uniquement disponibles dans l’espace des fréquences. Deux premières comparaisons sont présentées aux figures 4.4 et 4.5.

PyPlasma 4.1: Fonction d'efficacité

script complet : `pyplasma/examples/capsules/4.1_interference_patterns.py`

Les solutions numériques des figures 4.5 et 4.4 sont plus coûteuses en ressources computationnelles que les calculs des chapitres précédents, car ils nécessitent trois dimensions spatiales. Il est alors suggéré d'utiliser un GPU plutôt que le CPU (utilisé par défaut), ce qui est possible si la librairie PyTorch est installée. Si c'est le cas, le calcul sur GPU est optionnellement activé avec :

```
from pyplasma import *
set_backend('torch.cuda')
```

La vitesse de calcul dépend bien-sûr de la puissance de calcul disponible. La mémoire embarquée sur le GPU doit également être suffisante. Le présent exemple nécessite 1 GB de mémoire libre par exemple, mais accélère le calcul d'un facteur d'environ 15.

Un domaine en trois dimensions est créé ainsi :

```
dom = Domain(grid=[50,120,120], size=[600*nm,12*um,12*um],
             pml_width=200*nm)
```

Le laser est ajouté de la même façon. En trois dimensions, la source lumineuse est automatiquement changée en onde plane uniforme. Puis, le matériau est également ajouté de la même façon, mais on utilise le modèle de Drude afin d'avoir un indice de réfraction complexe, tel que :

```
mat = Material(index=index, resonance=120e-9,
              drude_params={'rho':plasma_density, 'damping':1e15})
```

Afin d'ajouter une rugosité de surface, on ajoute cette commande juste après avoir ajouté le matériau au domaine :

```
dom.add_material(mat, boundaries={'xmin':300*nm})
surface_roughness(mat, boundary='xmin', amplitude=20*nm,
                 noise='binary')
```

Afin de calculer l'intensité moyenne sous la surface une fois la simulation terminée, on peut utiliser un autre type d'observateur qui permet de conserver des données en mémoire :

```
dom.add_observer(Returner('E', x=300*nm))
results = dom.run(15*fs, stability_factor=0.9)
I = results['E']**2
I_moy = np.sum(I, axis=0)/dom.Nt
```

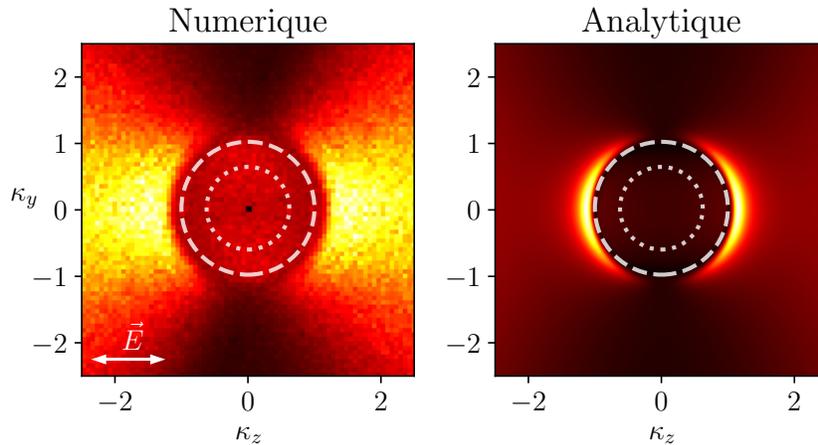


FIGURE 4.5 – Fonction d’efficacité η pour un matériau dont l’indice de réfraction est $n = 0.62 + 2i$, présentant des comportements de type-s et type-r. À gauche, la solution a été obtenue numériquement. Le bruit dans la solution numérique a été amoindri en effectuant le même calcul 50 fois et en moyennant les solutions. À droite, la solution a été obtenue analytiquement avec le modèle de Sipe. Le cercle externe indique $|\vec{\kappa}| = 1$ et le cercle interne représente $|\vec{\kappa}| = \text{Re}(n)$.

À la figure 4.4, un comportement de type-d est observé, tel qu’attendu, car le matériau est optiquement transparent ($n = 1.5 + 0i$). Les solutions numérique et analytique présentent plusieurs similarités évidentes. La section le long de l’axe κ_y est montrée à la figure 4.6 où on peut apprécier l’accord entre les deux méthodes pour le comportement de type-d.

Il y a aussi quelques différences notables. D’abord, le bruit présent dans la solution numérique provient de la discrétisation de la nature aléatoire de l’implémentation de la rugosité de surface et de la finitude du domaine de simulation. Afin d’amoindrir le niveau de bruit, on peut répéter le calcul un certain nombre de fois et moyennner les résultats. Une autre différence importante souvent observée est particulièrement mis en évidence aux figures 4.5 et 4.7, soit l’évolution de la fonction d’efficacité vers les fréquences élevées le long de l’axe κ_z . Cette différence est principalement due au comportement de type-r qui peut varier considérablement entre les deux méthodes. D’une part, il s’agit d’un comportement qui est généralement mal décrit par le modèle analytique, car son domaine de validité est restreint aux basses fréquences. De plus, le comportement de type-r prédit par la méthode numérique est très sensible aux caractéristiques de la rugosité de surface. À ce stade, il est difficile de déterminer laquelle de ces deux solutions est la plus représentative de la réalité. C’est en explorant des résultats qui vont au-delà des contraintes du modèle analytique que l’on pourra avoir une meilleure compréhension de l’importance relative du comportement de type-r. Par exemple, on verra plus bas que ce comportement est considérablement inhibé si on mesure le champ plus profondément sous la surface (voir la figure 4.8).

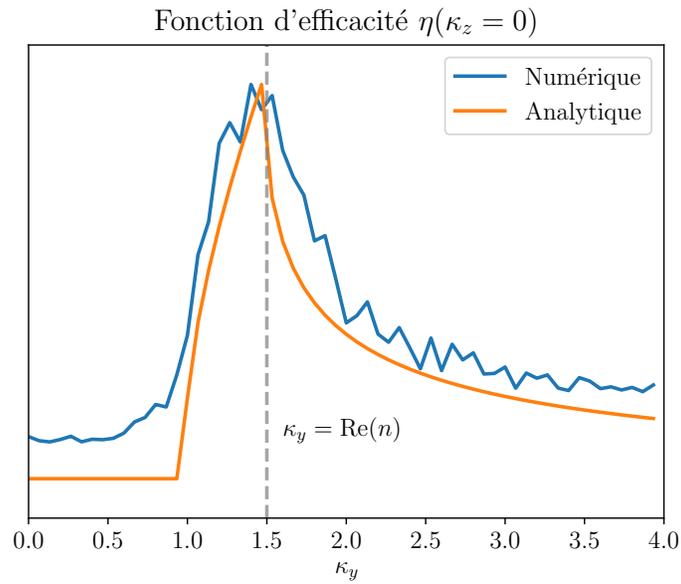


FIGURE 4.6 – Sections $\kappa_z = 0$ des solutions numérique et analytique de la fonction d'efficacité présentées à la figure 4.4. L'amplitude absolue des deux courbes est arbitraire.

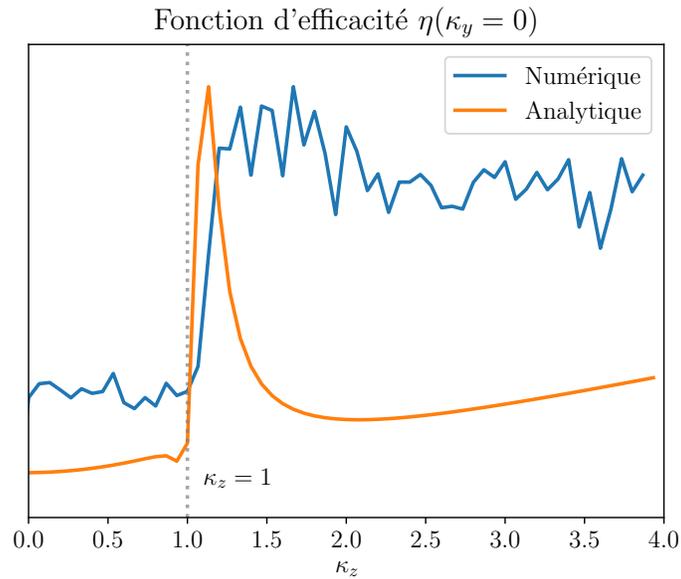


FIGURE 4.7 – Sections $\kappa_y = 0$ des solutions numérique et analytique de la fonction d'efficacité présentées à la figure 4.5. L'amplitude absolue des deux courbes est arbitraire.

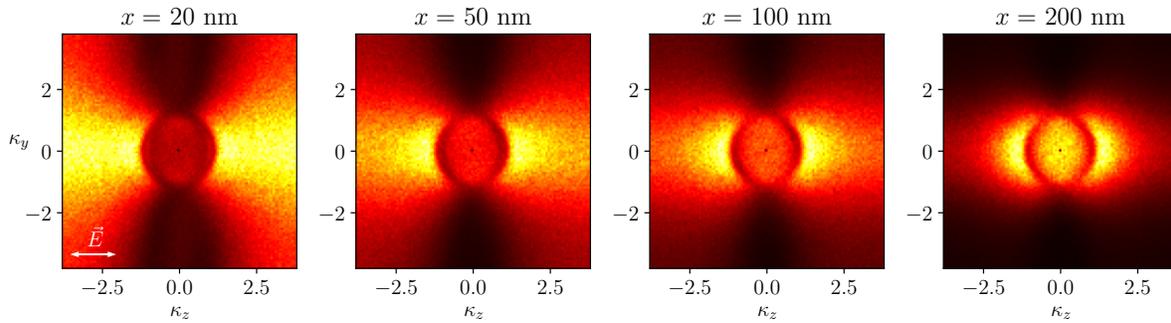


FIGURE 4.8 – Fonction d’efficacité η à différentes profondeurs x , pour un matériau dont l’indice de réfraction est $n = 0.62 + 2i$, présentant des comportements de type-s et type-r. Les simulations ont été répétées 50 fois et les résultats moyennés afin de réduire le bruit. Près de la surface, les comportements de type-s et de type-r se confondent. Plus le champ électromagnétique est mesuré en profondeur, plus le comportement de type-r devient faible par rapport au type-s.

Ayant développé une méthode qui permet de prédire la fonction d’efficacité sans les contraintes du modèle analytique, on peut désormais étendre l’exploration. Sans aucune modification nécessaire au modèle numérique, on peut commencer en mesurant la fonction d’efficacité pour des profondeurs $x > 0$. On obtient ainsi les résultats présentés à la figure 4.8.

4.5 Effets de la morphologie de la rugosité de surface

Il est clair à ce stade que la rugosité de surface est un élément central du phénomène de formation des LIPSS. Pourtant, il n’y a eu que très peu d’études sur la manière de l’incorporer dans les calculs. À la section 4.4, la rugosité de surface a été modélisée par une fonction binaire, tel que proposé dans [90]. Dans cette section, d’autres approches sont implémentées et testées.

4.5.1 Fonctions aléatoires : du bruit binaire au bruit fractal

L’approche de la fonction binaire a déjà été présentée. La position de la surface a une probabilité f d’être à $x = r_a$ et une probabilité $(1 - f)$ d’être à $x = 0$. Un exemple de surface rugueuse résultante de cette méthode, avec $f = 0.1$, est présenté à la figure 4.9(a).

Une deuxième approche est une fonction aléatoire continue. Contrairement à la fonction binaire qui peut qu’avoir une valeur de 0 ou r_a , celle-ci peut prendre n’importe quelle valeur entre 0 et r_a . On y réfère par du bruit blanc [voir la figure 4.9(b)], car il n’y a pas de fréquence préférentielle dans une telle fonction.

Les deux prochaines approches testées impliquent du bruit de Perlin [69]. Ce type de bruit

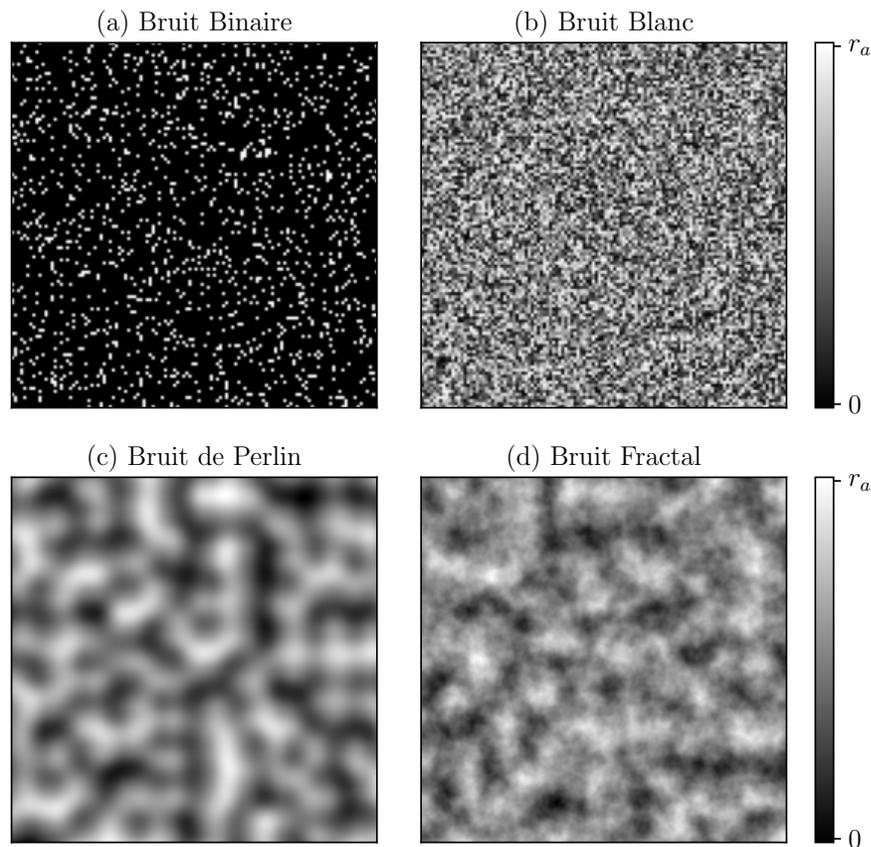


FIGURE 4.9 – Position de la surface résultante de différentes implémentations de la rugosité de surface.

est très répandu dans le domaine des arts computationnels afin de générer automatiquement certains types de textures ou de formes à l'apparence réaliste, tels que des montagnes ou des nuages. L'idée derrière le bruit de Perlin est très simple, plutôt que d'assigner une valeur aléatoire à chaque point d'une grille, comme pour du bruit blanc, on assigne plutôt un gradient aléatoire en tout point. Les formes résultantes sont alors considérablement plus douces, tel que l'on peut constater avec l'exemple de la figure 4.9(c). Le bruit de Perlin utilise également une forme de régularisation qui empêche la valeur absolue de la texture générée de s'égarer vers des valeurs trop grandes. Un paramètre supplémentaire doit alors être introduit, soit une grandeur caractéristique. Les gradients sont alors légèrement ajustés afin de s'assurer que la valeur de la position retourne près de 0 à une fréquence spatiale comparable à l'inverse de la grandeur caractéristique. À titre indicatif, cette grandeur caractéristique pour l'exemple de la figure 4.9(c) est 10 fois plus petite que la largeur totale de la grille générée.

Finalement, le bruit fractal est le dernier cas testé dans cette section. Ce type de bruit est

obtenu en superposant plusieurs bruits de Perlin de grandeurs caractéristiques et d’amplitude graduellement plus petites. Typiquement, on commence par générer un bruit de Perlin standard avec la grandeur caractéristique et l’amplitude désirées. Puis, on en génère un second avec une grandeur caractéristique réduite de moitié et d’une amplitude réduite d’un facteur nommé persistance. On additionne les deux résultats, puis on répète un nombre de fois que l’on nomme le nombre d’octaves. Par exemple, la figure 4.9(d) a été obtenue avec une grandeur caractéristique 10 fois plus petite que la taille totale de la grille, une persistance de 0.5 et 5 octaves.

4.5.2 Simulations avec différentes implémentations de la rugosité

En utilisant chacune des quatre méthodes d’implémentation de la rugosité de surface décrites plus haut, on obtient les fonctions d’efficacité calculées numériquement montrées aux figures 4.10(a)-(d). Les propriétés optiques et tous les autres paramètres sont les mêmes que ceux qui ont été utilisés pour obtenir la figure 4.4. On observe alors un comportement de type-d, tel qu’attendu. La seule différence perceptible entre les 4 cas est la légère diminution des hautes fréquences accompagnant l’utilisation d’un bruit blanc par rapport au bruit binaire, et des bruits de Perlin et fractal, par rapport au bruit blanc. Ceci semble relié aux variations moins abruptes dans les positions des surfaces rugueuses, qui contribuent probablement en grande partie aux hautes fréquences observées.

Il faut rappeler que les intensités calculées dans l’espace de Fourier ne sont pas nécessairement proportionnelles à la fonction d’efficacité de la théorie de Sipe. L’équation (4.1), une fois inversée, indique plutôt que $\eta(\vec{\kappa}) \propto I(\vec{\kappa})/|b(\vec{\kappa})|$, où $b(\vec{\kappa})$ est la transformée de Fourier de la position de la surface rugueuse. Aux figures 4.10(e)-(h), les fonctions $b(\vec{\kappa})$ pour les 4 types de rugosités sont montrées. Puis, en divisant les intensités par leurs fonctions $b(\vec{\kappa})$ respectives, on obtient les fonctions d’efficacité $\eta(\vec{\kappa})$ des figures 4.10(i)-(l). Due à la taille finie des domaines de simulation, les fréquences les plus basses sont mal représentées et cela cause un subtil maximum local dans les fonctions d’efficacité pour les bruits de Perlin et fractal [voir les figures 4.10(k) et (l)]. Sauf cette exception, les fonctions d’efficacité de toutes les implémentations de rugosité de surface testées sont pratiquement identiques.

4.6 Effets de l’oxydation de la surface

Dans cette section, on présente les résultats d’un projet collaboratif qui ont été publiés dans [33]. Ce projet se divise en deux parties. D’abord, un volet expérimental qui ne sera que brièvement résumé ici. Puis, un volet numérique qui s’inscrit bien dans le cadre du présent chapitre. Typiquement, la formation des LIPSS est trop rapide pour être directement observée en laboratoire et seules les structures résultantes sont accessibles pour les appareils de mesure.

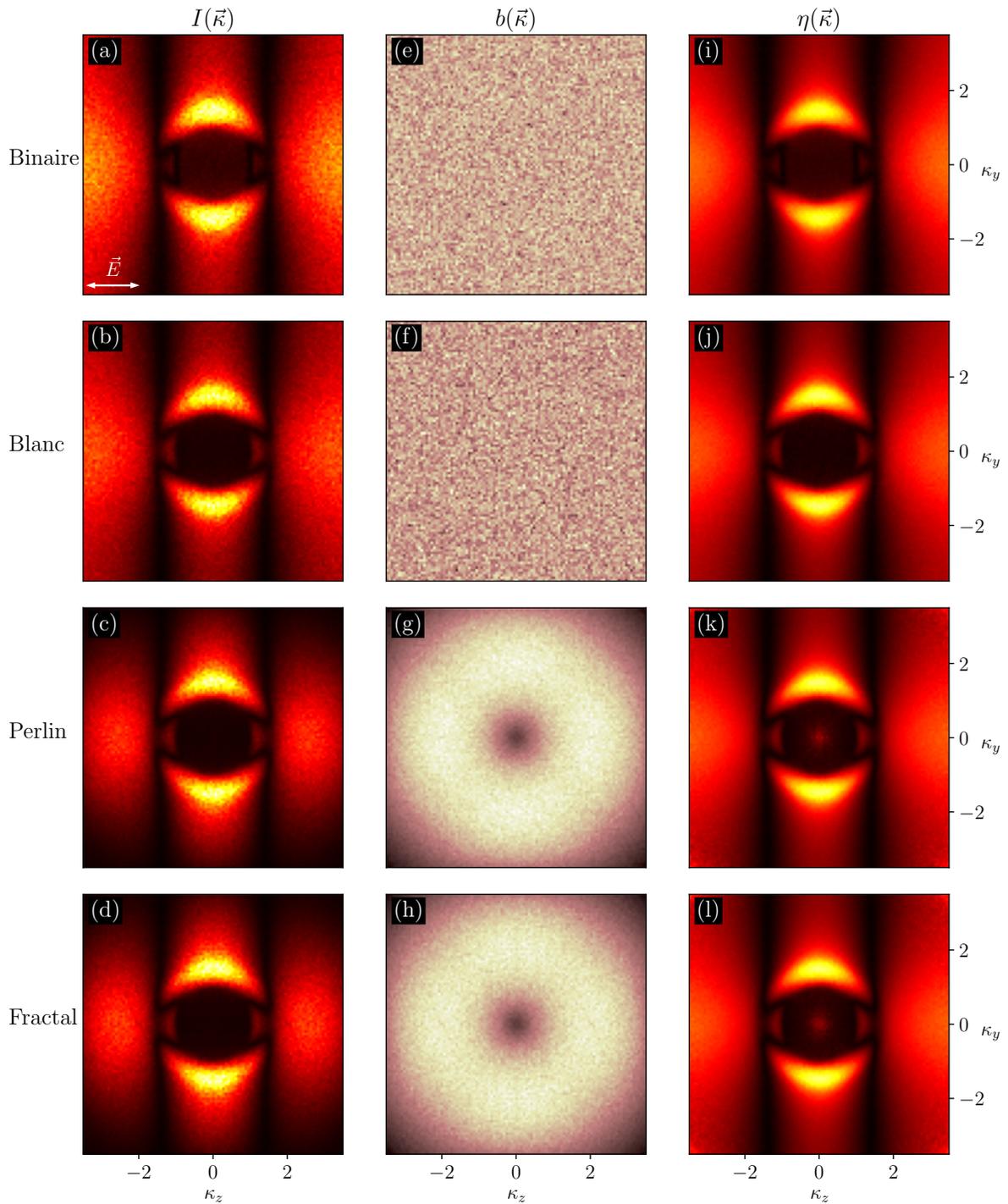


FIGURE 4.10 – [(a) à (d)] Transformée de Fourier de l'intensité lumineuse $I(\vec{\kappa})$ [voir l'équation (4.3)] sous une surface rugueuse obtenue numériquement, avec les quatre méthodes d'implémentation de la rugosité de surface illustrées à la figure 4.9. [(e) à (h)] Transformée de Fourier de la position de la surface rugueuse $b(\vec{\kappa})$ pour les quatre méthodes. [(i) à (l)] Fonctions d'efficacité $\eta(\vec{\kappa}) = I(\vec{\kappa})/|b(\vec{\kappa})|$. L'indice de réfraction est $n = 1.5$ et chaque simulation a été répétée 50 fois afin de moyennner et réduire le bruit dans les résultats présentés.

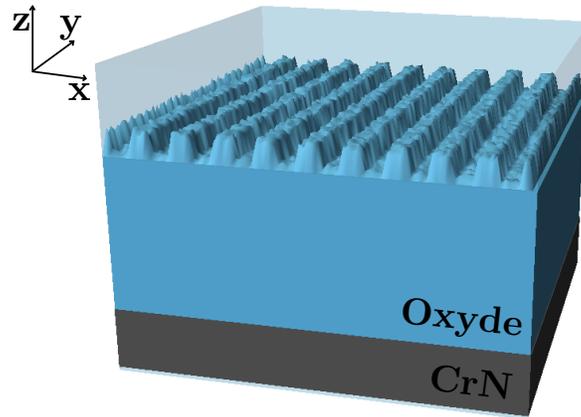


FIGURE 4.11 – Domaine de simulation FDTD. Le CrN non-oxydé est au bas du domaine et est directement attaché à des PMLs, de façon à imiter une profondeur infinie du matériau. Au-dessus, une couche du matériau oxydé est ajoutée, d’une épaisseur égale à T_{Oxy} . À la surface de la partie oxydée, des structures périodiques d’amplitude A_{HSFLs} et de période $\Lambda_{\perp} = 100\text{nm}$ (perpendiculaire à la polarisation du laser) sont ajoutées. Une rugosité est ajoutée au-dessus des structures périodiques en ajoutant un bruit blanc d’une amplitude $r_a = 40\text{ nm}$. Finalement, le reste du domaine est du vide, au-dessus duquel d’autres PMLs sont ajoutées.

C’est pourquoi il est pertinent de se tourner vers les méthodes numériques. Les simulations numériques de ce dernier volet ont pour but de reproduire l’interaction électromagnétique qui a entraîné la formation des réseaux de surface observés dans le premier volet expérimental.

Dans une expérience de formation de réseaux de surface sur un substrat de nitrure de chrome (CrN), un phénomène nouveau a été observé. Une superposition de deux couches de structures périodiques, orientées perpendiculairement l’une par rapport à l’autre s’est formée. La première s’apparentant à un comportement de type-d ($\Lambda_{\parallel} \sim \lambda/n$) et la seconde, à un comportement de type-r ($\Lambda_{\perp} \ll \lambda$). Une cohabitation de ces deux comportements n’est pas nouveau et même plutôt fréquent. La particularité est que ces deux structures ne se sont pas formées à la même profondeur dans le matériau.

L’intense irradiation laser a entraîné l’oxydation d’une certaine épaisseur de la surface du CrN, impliquant qu’il a alors deux interfaces à considérer. La première interface est celle entre l’environnement et la couche oxydée, puis la seconde est celle entre la couche oxydée et le CrN non-oxydé. Les structures de type-r sont observées à la première interface et les structures de type-d, en dessous, à la seconde interface. Les détails des conditions expérimentales et les méthodes employées afin d’observer et mesurer les propriétés des structures formées sont disponibles dans [33].

Ne pouvant pas directement observer le processus de formation des structures pendant l’expérience, c’est ici que les méthodes numériques entrent en jeu (voir le chapitre 3). On commence

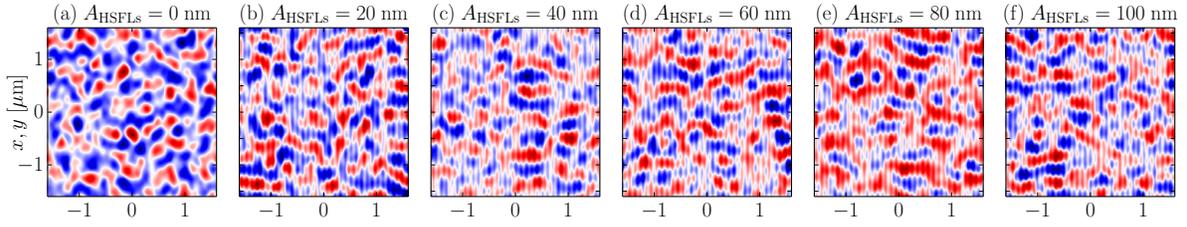


FIGURE 4.12 – Intensité lumineuse moyenne [voir l'équation (4.3)] à l'interface entre le CrN et la couche de matériau oxydée (voir l'illustration du domaine de simulation à la figure 4.11). De (a) à (f), l'amplitude A_{HSFLs} des structures périodiques à la surface de la couche oxydée est augmentée graduellement de 0 à 100 nm.

par créer un domaine de simulation, tel qu'illustré à la figure 4.11. Dû à des limitations expérimentales, l'épaisseur de la couche oxydée, sa composition chimique exacte et l'amplitude des structures de type-r sont inconnues. Pour la composition chimique, tout ce qui importe pour ces simulations FDTD est l'indice de réfraction, que l'on peut estimer à $n_{\text{oxyde}} = 2 + 0i$. L'indice de réfraction du CrN est $n = 2.439 + 1.623i$. L'épaisseur de la couche oxydée et l'amplitude des structures de type-r sont des paramètres libres, T_{Oxy} et A_{HSFLs} respectivement.¹

L'impulsion laser a une enveloppe temporelle gaussienne, d'une durée de $\tau = 25$ fs et se propage de $+z$ à $-z$ (notez que l'orientation des axes est différente par rapport aux sections précédentes). Les paramètres de discrétisation sont $\delta_x = \delta_y = 5$ nm, $\delta_z = 2$ nm et $\delta_t = 5.516$ attosecondes. Les dimensions du domaine sont de $3.2 \mu\text{m}$ en x , $3.2 \mu\text{m}$ en y et d'une épaisseur variable en z , en fonction des paramètres T_{Oxy} et A_{HSFLs} . Une durée totale de 100 fs est simulée.

À la figure 4.12, l'intensité moyenne du champ [voir l'équation (4.3)] à l'interface entre la couche oxydée et le CrN est montrée, pour différentes valeurs de A_{HSFLs} et $T_{\text{Oxy}} = 100$ nm. À la figure 4.12(a), avec $A_{\text{HSFLs}} = 0$ (pas de structures de type-r à la surface de la couche oxydée), l'intensité lumineuse moyenne à l'interface entre la couche oxydée et le CrN ne présente pas de motif organisé. Pourtant, c'est là où des structures de type-d sont observées expérimentalement. Aux figures 4.12(b) à (f), les structures de type-r à la surface de la couche oxydée sont présentes et on peut entrevoir le motif propre aux structures de type-d apparaître, soit $\Lambda_{\parallel} \sim \lambda/n$. Ainsi, la présence des structures de type-r sur la couche oxydée semble jouer un rôle essentiel dans le processus de formation des structures inférieures. Toutefois, l'explication de cette nécessité reste une question ouverte à ce jour.

Afin d'étudier l'importance de l'épaisseur de la couche oxydée, la figure 4.13 montre l'intensité moyenne à la même interface pour différentes valeurs de T_{Oxy} et $A_{\text{HSFLs}} = 50$ nm. Les

1. HSFL signifie *high spatial frequency LIPSS*, un autre nom souvent utilisé afin de décrire les structures de hautes fréquences, telles les structures de type-r.

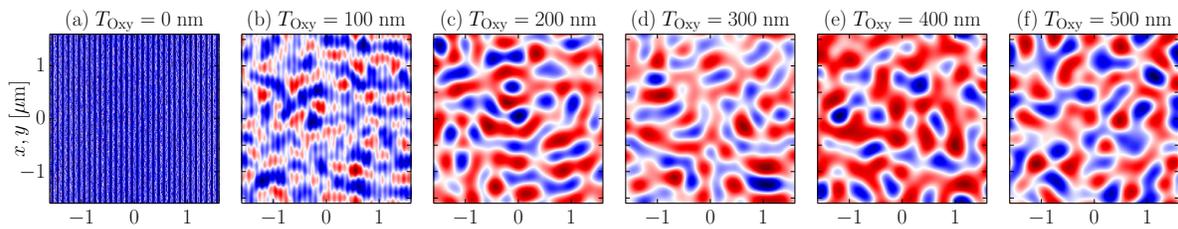


FIGURE 4.13 – Intensité lumineuse moyenne [voir l'équation (4.3)] à l'interface entre le CrN et la couche de matériau oxydée (voir l'illustration du domaine de simulation à la figure 4.11). De (a) à (f), l'épaisseur de la couche oxydée T_{Oxy} est graduellement augmentée de 0 à 500 nm.

résultats suggèrent qu'il y a une épaisseur optimale entre 100 et 200 nm.

4.7 Conclusions

À l'exception des derniers travaux de Skolski *et al.* [89, 91] et de l'extension de ceux-ci [31] présentée au chapitre 6, la majeure partie des travaux effectués à l'aide de modèles purement électromagnétiques ont été présentés. Le modèle théorique de Sipe a marqué le premier grand pas dans la bonne direction en identifiant l'importance de la rugosité de surface. Les patrons d'interférence propres aux matériaux transparents ou métalliques obtenus avec ces calculs ont pu expliquer l'origine des comportements de type-s et de type-d.

Les limites du modèle analytique atteintes, les méthodes numériques ont aujourd'hui pris le relais. On a d'abord présenté comment on pouvait reproduire les patrons d'interférence de la méthode analytique avec des simulations basées sur la méthode FDTD présentée au chapitre 3. Finalement, on a pu utiliser cette méthode pour simuler et étudier deux aspects originaux. En premier lieu, on a testé différentes morphologies de rugosité de surface, avec quatre implémentations différentes basées sur des fonctions génératrices différentes de bruit aléatoire. Les fonctions d'efficacité obtenues étaient indépendantes du choix de fonction génératrice. La deuxième étude, publiée dans [33], a permis de simuler les patrons d'interférence obtenus en la présence d'oxydation à la surface du substrat irradié.

À ce stade, on commence à entrevoir les limites de ces simulations. Chaque patron d'interférence obtenu numériquement est également présent dans les prédictions des calculs analytiques. Certains patrons vont avoir une importance relative différente d'un modèle à l'autre et les simulations numériques permettent d'étudier des cas plus complexes et avec moins de restrictions, mais les résultats sont, jusqu'à maintenant, toujours des combinaisons des mêmes types de comportements (type-s, type-d, type-r ou type-m). Pourtant, certaines nanostructures périodiques observées en laboratoires n'entrent dans aucune de ces catégories.

L'une d'entre elles, parfois surnommée *grooves* dans la littérature, présente une périodicité supérieure à la longueur d'onde $\Lambda > \lambda$ [42, 10]. Un autre patron toujours absent des prédictions, très souvent observé en laboratoire sur des matériaux diélectriques est $\Lambda_{\perp} \sim \lambda/2n$ [97, 36, 98, 72]. Les structures présentant ce motif sont particulièrement avantageuses pour de nombreuses applications, car elles sont très fines et régulières. Ces deux exemples de structures périodiques nécessitent l'introduction d'un nouvel ingrédient dans les simulations. Il s'agit de la rétroaction entre les structures périodiques en formation et la source laser. Cette notion peut être implémentée de diverses façons, développées dans les prochains chapitres.

Troisième partie

Auto-organisation

Chapitre 5

Auto-organisation intra-impulsion du plasma

Ce chapitre est en grande partie une traduction de la publication originale [27], portant sur la formation et l'auto-reconfiguration de motifs apparaissant dans le profil de la densité du plasma induit par une impulsion laser.

5.1 Motivation

À partir de ce chapitre, on aborde la notion d'auto-organisation, centrale au processus de formation des réseaux de surface [37, 98, 105]. Le terme auto-organisation comporte deux parties : *auto* et *organisation*. On reviendra sur le premier aspect à la section 5.3. Quant à l'aspect « organisation », cela réfère à la régularité des LIPSS. Ces structures sont dites organisées, car elles ont une période et une orientation assez bien définies et ne sont pas constituées de structures aléatoires et difformes comme peut l'être une simple surface rugueuse avant un traitement au laser. L'organisation des réseaux de surface a été abordée au chapitre 4 et il y a été démontré que l'interaction entre une onde plane et une surface rugueuse de morphologie aléatoire peut résulter en une déposition organisée de l'énergie lumineuse. Les phénomènes d'interférence ainsi observés peuvent expliquer, au moins en partie, comment des structures organisées peuvent émerger d'une situation initiale sans aucune organisation apparente.

Mais le portrait est loin d'être complet. Par exemple, comment expliquer qu'un comportement de type-s, associé à des matériaux absorbants comme des métaux, puisse être observés à la surface de divers diélectriques [106, 3] ? De plus, les prédictions des méthodes analytique et numérique, telles que celles obtenues au chapitre 4, ont principalement été présentées dans le domaine fréquentiel. Dans le domaine spatial, l'organisation des nanostructures périodiques n'est pas toujours évidente à discerner. Par exemple, on voit avec la figure 5.1(b) que le com-

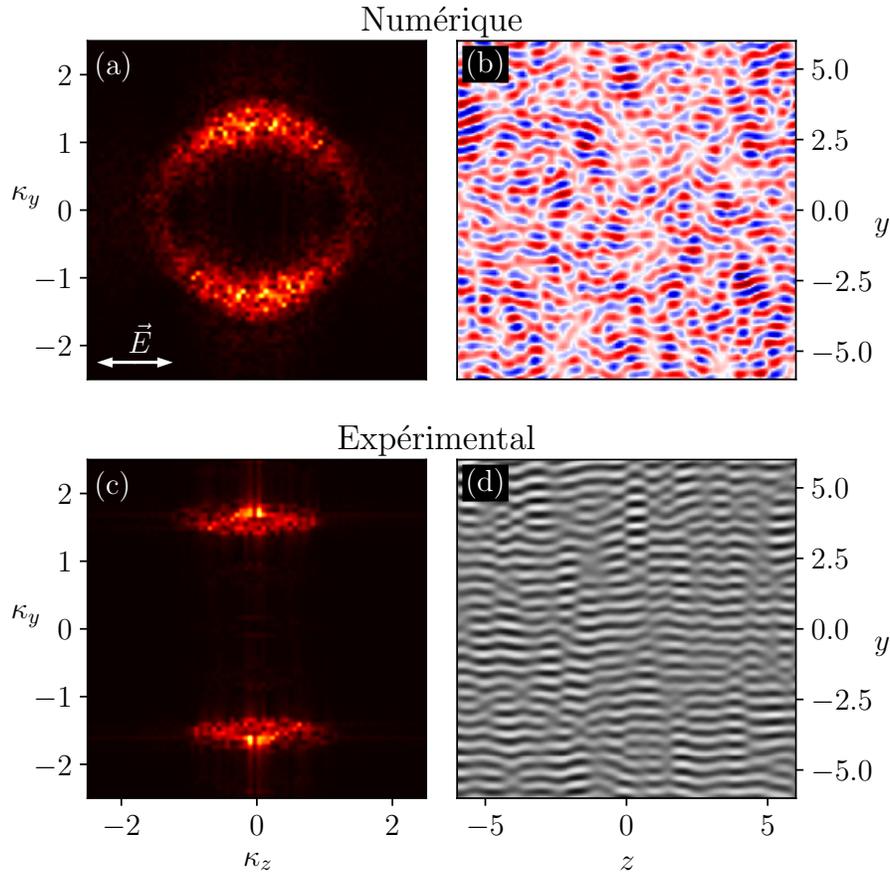


FIGURE 5.1 – Comparaison entre les résultats d’une intégration numérique de la moyenne de l’intensité lumineuse à une profondeur de $z = 150$ nm sous une surface rugueuse et une observation expérimentale au microscope électronique de LIPSS formés à la surface d’un échantillon de silice (SiO_2) [64]. Les prédictions du modèle numérique, obtenues avec $n = 1.5$ et $\lambda = 800$ nm, présentent des structures ayant la bonne orientation parallèle à la polarisation du laser (le long de l’axe z) et approximativement la périodicité attendue de $\Lambda_{\parallel} \sim \lambda/n$ (comportement de type-d). Une différence notable entre les résultats numériques et expérimentaux est la régularité des structures plus importante dans le second cas.

portement de type-d est bien visible dans le domaine spatial, mais il n’est pas aussi régulier que ce qui est observé en laboratoire [voir la figure 5.1(d)]. Ce constat est encore plus évident avec les structures de type-s [voir la figure 5.2(b), où les structures de type-s obtenues par intégration numérique sont pratiquement indiscernables et la figure 5.2(d), où les structures obtenues expérimentalement sont très régulières].

Ainsi, les prédictions des méthodes présentées au chapitre 4, basées sur les patrons d’interférence des ondes électromagnétiques interagissant avec une surface rugueuse sont incomplètes. La régularité de certains types réseaux de surface ne peut pas être reproduite dans les simulations. Pire encore, la période et l’orientation des structures prédites peuvent être

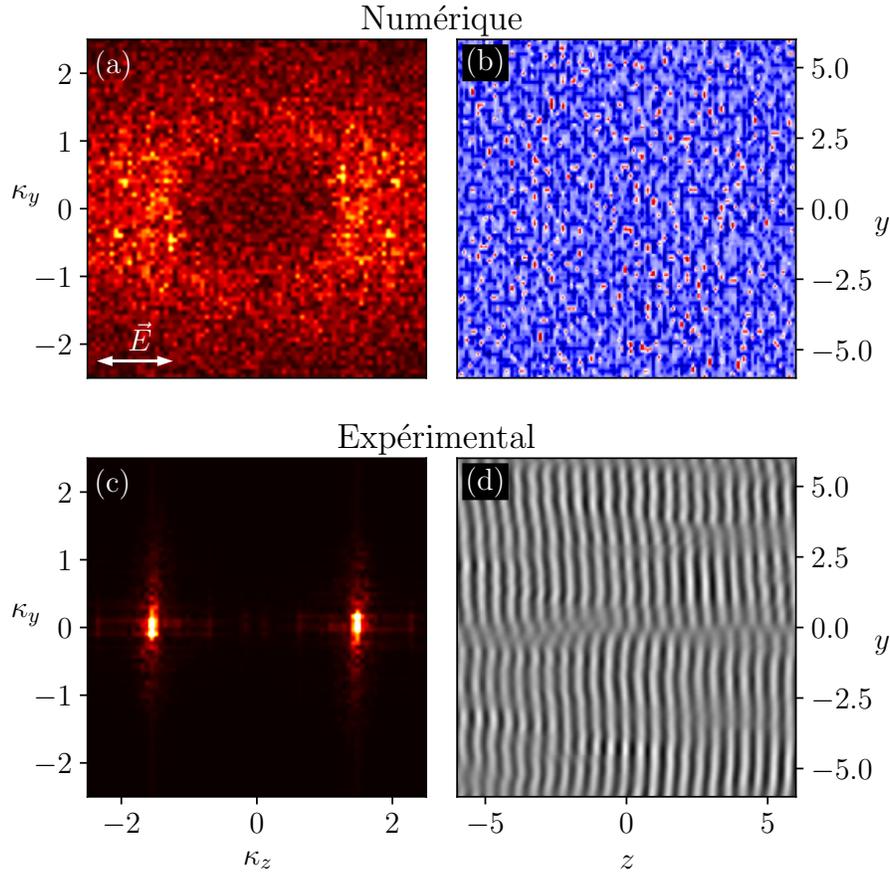


FIGURE 5.2 – Comparaison entre les résultats d’une intégration numérique de la moyenne de l’intensité lumineuse à une profondeur de $z = 50$ nm sous une surface rugueuse et une observation expérimentale au microscope électronique de LIPSS formés à la surface d’un échantillon de silicium (Si) [64]. Les prédictions du modèle numérique, obtenues avec $n = 1.23 + 3.36i$ et $\lambda = 800$ nm présentent des structures très irrégulières et difficiles à discerner [voir la figure (b)]. Dans l’espace de Fourier [voir la figure (a)], on peut voir qu’un comportement de type-s est bien présent, avec une orientation et une périodicité relativement en accord avec les résultats expérimentaux [voir la figure (c)]. Toutefois, ces derniers sont considérablement plus réguliers [voir la figure (d)].

complètement différentes entre les prédictions et les résultats obtenus (les structures de type-s observées expérimentalement sur des diélectriques ne peuvent pas être expliquées par ces modèles). Ce dernier problème peut être partiellement réglé par une simple modification au modèle, présentée à la section 5.2. Quant à la régularité des structures périodiques, ce sera abordé au chapitre 6.

Finalement, un motif de réseaux de surface fréquemment observé sur des matériaux diélectriques après leur irradiation est complètement absent des prédictions des modèles présentés jusqu'ici, soit $\Lambda_{\perp} \sim \lambda/2n$ [97, 6, 78, 36, 98, 72]. Ces structures sont obtenues dans les simulations de la section 5.3.1 et leur mécanisme de formation est expliqué à la section 5.3.2.

5.2 Rétroaction statique : théorie de Sipe-Drude

Les caractéristiques des LIPSS produites en laboratoire ne sont pas toujours les mêmes que celles prédites par la théorie de Sipe présentée à la section 4.3, ni celles de son équivalent numérique présenté à la section 4.4. L'exemple mentionné plus haut étant l'apparition de structures ayant une période $\Lambda_{\perp} \sim \lambda$, que l'on associe à un comportement de type-s, à la surface de matériaux diélectriques irradiés par une source laser de longueur d'onde λ . Selon la théorie de Sipe, un matériau transparent devrait présenter un comportement de type-d et les nanostructures produites devraient plutôt avoir une période de $\Lambda_{\parallel} \sim \lambda/n$.

La notion manquante à la théorie de Sipe est celle de la *rétroaction* entre le matériau irradié et la source lumineuse. Puisque l'intensité lumineuse nécessaire à la formation de réseaux de surface est grande (près du seuil d'ablation laser), on peut s'attendre à ce qu'une partie importante du matériau soit ionisée pendant l'irradiation (voir le chapitre 2). De plus, les propriétés optiques d'un matériau changent lorsqu'il est ionisé. D'où le concept de rétroaction : le laser modifie les propriétés optiques du matériau en l'ionisant, puis le plasma ainsi formé a un impact sur le champ laser, complétant une boucle de rétroaction.

Si on revient à l'exemple du comportement de type-s, associé aux matériaux absorbants par la théorie de Sipe, mais également observés expérimentalement sur des matériaux transparents, il est facile d'imaginer que cette boucle de rétroaction puisse expliquer ce désaccord. Le matériau est initialement transparent, puis l'impulsion laser atteint sa surface et le plasma est formé. C'est ce dernier qui rend le matériau absorbant et entraîne un comportement de type-s.

De cette idée a émergé le modèle de Sipe-Drude [10]. En combinant les modèles de Sipe (section 4.3) et de Drude (section 1.4), on peut prédire comment la période et l'orientation des réseaux de surface devraient évoluer en fonction de la densité de plasma dans le matériau irradié. À la figure 5.3 est montrée une transition du comportement de type-d vers un

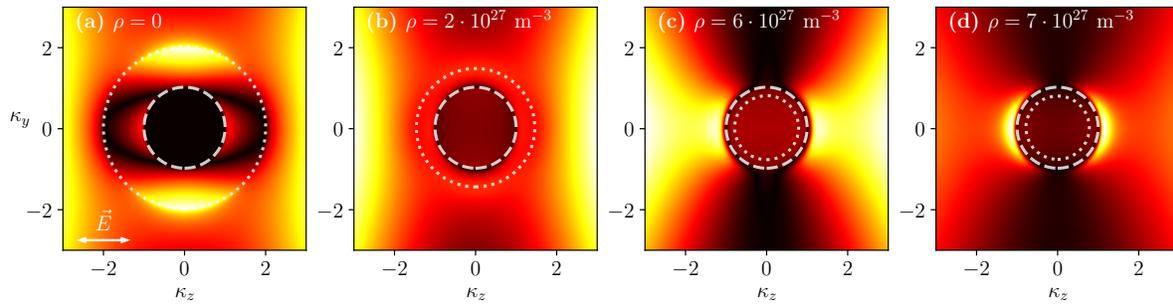


FIGURE 5.3 – Fonctions d’efficacité $\eta(\vec{\kappa})$ prédites par le modèle de Sipe-Drude pour la silice (SiO_2) à différents stades d’ionisation. Sans la présence de plasma, comme à la figure (a) avec $\rho = 0$, un comportement de type-d est prédit, en accord avec le modèle de Sipe pour un matériau diélectrique transparent. À mesure que la densité du plasma augmente [figures (b) à (d)], on observe une transition vers un comportement de type-s, car le matériau devient de plus en plus absorbant et opaque, selon le modèle de Drude.

comportement de type-s pour un diélectrique à différents niveaux d’ionisation. Les fonctions d’efficacité ont été obtenues en solutionnant les équations du modèle de Sipe, pour un indice de réfraction dépendant de la densité de plasma. Cet indice de réfraction est calculé avec le modèle de Drude [voir les équations (1.35a) et (1.35b)].

Ainsi, la formation de plasma durant l’irradiation laser du matériau peut modifier ses propriétés optiques de façon importante. Suffisamment pour qu’il passe d’un matériau transparent à un matériau opaque, expliquant ainsi la transition d’un comportement de type-d à un comportement de type-s (voir la figure 5.3). Malgré ce succès, la boucle de rétroaction du modèle de Sipe-Drude est limitée, car elle est en réalité incomplète.

Une boucle de rétroaction complète nécessite que le champ électromagnétique influence la formation de plasma et que le plasma influence en retour le comportement du champ laser. Bien que cela semble être le cas avec le modèle de Sipe-Drude, la densité de plasma est en fait un paramètre indépendant du modèle. On a calculé l’impact du plasma sur le comportement du champ laser, mais pas l’inverse.

Pour compléter la boucle de rétroaction, il faut ajouter au modèle les outils présentés au chapitre 2 permettant de calculer le taux de formation de plasma dans un solide irradié. Avec cet ajout, le champ laser et le plasma évolueraient l’un en fonction de l’autre de façon dynamique et cohérente. C’est pourquoi, à la section 5.3, on réfère à cette boucle complète par une *boucle de rétroaction dynamique*. À l’inverse, on réfère à la boucle incomplète du modèle de Sipe-Drude par une *boucle de rétroaction statique*.

5.3 Rétroaction dynamique d'un plasma en formation

Au début de ce chapitre, on a mentionné la notion d'auto-organisation, dans le contexte de la formation de réseaux de surface. On a vu au chapitre 4 comment des structures périodiques organisées peuvent émerger de l'interaction entre une onde plane et une surface rugueuse à la morphologie aléatoire. De cette organisation initiale peut ensuite être déclenché un mécanisme d'auto-organisation. Pour que cela soit possible, une forme d'auto-interaction doit être présente. Par exemple, si le champ électromagnétique pouvait interagir avec lui-même durant l'irradiation de la surface du matériau solide. Une façon de permettre cette auto-interaction est d'introduire une boucle de rétroaction.

Un premier pas vers l'implémentation d'une forme de rétroaction a été fait avec le modèle de Sipe-Drude [10], présenté à la section 5.2. La boucle de rétroaction de ce modèle prend place entre le champ électromagnétique et le plasma généré par ce dernier. En retour, le plasma entraîne des courants qui affectent le champ électromagnétique. Puisque cette boucle est présente pendant l'interaction avec l'impulsion laser, il s'agit d'une boucle de rétroaction intra-impulsion (en opposition aux boucles de rétroaction inter-impulsions, étudiées au chapitre 6). Tel que discuté plus haut, la boucle de rétroaction du modèle de Sipe-Drude est statique et non dynamique, car la densité de plasma est définie *ab initio*, puis le champ électromagnétique n'a plus aucun impact sur le plasma.

Dans cette section, un nouveau modèle est développé afin d'inclure une boucle de rétroaction intra-impulsion dynamique. Avec une telle boucle, la densité de plasma n'est plus un paramètre indépendant et évolue en fonction des mécanismes d'ionisation présentés au chapitre 2. Une conséquence importante est que la densité de plasma n'est plus une constante et varie en fonction du temps et de l'espace.

Tous les ingrédients de ce modèle ont déjà été introduits au cours des chapitres précédents. De la méthode numérique présentée à la section 4.4, on a accès aux champs électromagnétiques en fonction du temps et de l'espace sous la surface rugueuse d'un solide irradié. Les taux d'ionisation sont ensuite calculés avec un des modèles de la section 2.3, le modèle à taux simple (SRE), le modèle à taux multiples (MRE) ou le modèle à taux décalés (DRE). Pour l'instant, le modèle SRE est utilisé.¹ Finalement, la boucle de rétroaction intra-impulsion dynamique est complétée avec l'implémentation des courants intra-bandes du plasma, calculés avec le modèle de Drude (voir la section 1.4.2 pour le modèle théorique, puis la section 3.2.3 pour les détails de l'implémentation numérique).

1. Une bonne partie des résultats de ce chapitre ont été publiés dans [27] avant que le modèle à taux décalés (DRE) [28] présenté au chapitre 2 ne soit développé. C'est pourquoi plusieurs résultats montrés plus bas sont obtenus avec le modèle à taux simple (SRE). Toutefois, le modèle DRE a été implémenté afin d'effectuer des simulations similaires et une comparaison entre les deux cas est proposée à la section 5.4.

Enfin, on utilise un domaine de simulation tel qu'illustré à la figure 5.4. Afin d'étudier quels types de structures peuvent apparaître dans les conditions de ce nouveau modèle muni d'une boucle de rétroaction dynamique intra-impulsion, on commence par propager une impulsion laser, de la même façon que pour les simulations du chapitre 4. Ensuite, on mesure la densité du plasma en fonction du temps et de l'espace. Les résultats sont présentés à la section 5.3.1.

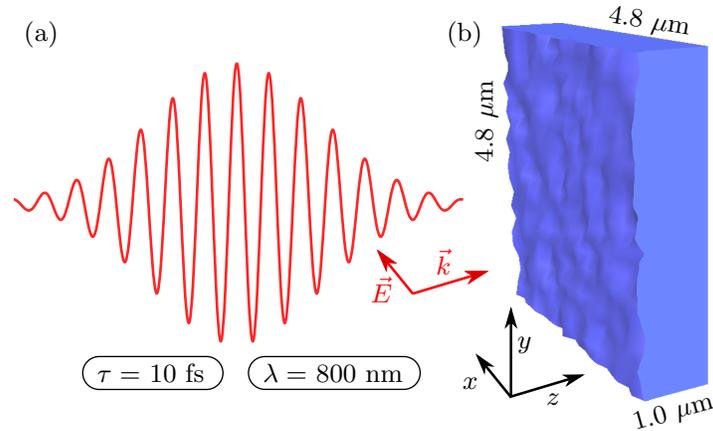


FIGURE 5.4 – Représentation schématique des simulations effectuées pour les sections 5.3.1, 5.3.2, 5.3.3, 5.3.4 et 5.4. En (a), une impulsion laser (durée d'impulsion $\tau = 10$ fs et longueur d'onde $\lambda = 800$ nm) polarisée linéairement le long de l'axe x se propage vers l'axe $+z$. Elle frappe, à incidence normale, la surface rugueuse d'un échantillon de silice (SiO_2) schématisé en (b). La forme de la rugosité de surface est basée sur un bruit blanc [voir la figure 4.9(b)], dont l'amplitude est $r_a = 40$ nm.

5.3.1 Auto-reconfiguration des structures de plasma

Le résultat le plus surprenant obtenu avec le modèle décrit plus haut est l'observation d'une reconfiguration des structures organisées de plasma durant l'irradiation (voir la figure 5.5). Les structures de plasma sont initialement orientées parallèlement (\parallel) par rapport à la polarisation du laser, avec une périodicité $\Lambda_{\parallel} \sim \lambda/n$ (comportement de type-d, associé aux matériaux transparents). Durant le processus d'ionisation, les structures de plasma changent d'orientation et de périodicité. Après cette transition très rapide (1-2 cycles optiques), les structures sont perpendiculaires (\perp) à la polarisation du laser et leur périodicité est désormais de $\Lambda_{\perp} \sim \lambda/2n$. Cette transition est observée si la fluence de l'impulsion laser est suffisamment grande pour que le plasma atteigne sa densité critique ρ_c [voir l'équation (2.36)]. Comme il a été fait à la section 2.5, la fluence minimale pour laquelle la densité de plasma peut atteindre sa densité critique est nommée la fluence seuil F_{th} .

Ces deux patrons ($\Lambda_{\parallel} \sim \lambda/n$ et $\Lambda_{\perp} \sim \lambda/2n$) sont tous les deux fréquemment observés en laboratoire à la surface de matériaux qui ont été irradiés par des impulsions laser près ou

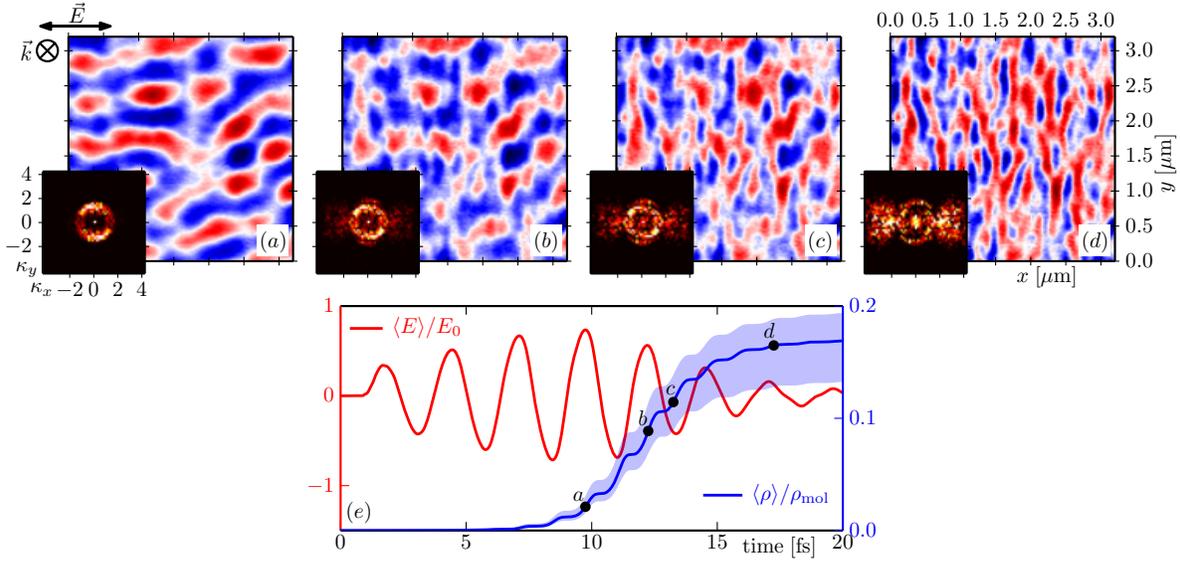


FIGURE 5.5 – [(a) à (d)] : Évolution temporelle des variations spatiales dans la densité du plasma $\rho(x, y, z)$ (minimum en bleu et maximum en rouge) à la profondeur $z = 140$ nm sous la surface rugueuse irradiée par une impulsion laser de durée $\tau = 10$ fs et de fluence $F = 3$ J/cm² (voir l'illustration du domaine de simulation à la figure 5.4). De (a) à (d), le temps de la simulation avance et on observe une transition des caractéristiques des structures de $\Lambda_{\parallel} \sim \lambda/n$ à $\Lambda_{\perp} \sim \lambda/2n$. Les figures superposées montrent les transformées de Fourier pour la figure correspondante. En (e), l'évolution de la valeur moyenne de l'amplitude du champ électrique E (normalisée par rapport à E_0) et de la valeur moyenne de la densité du plasma ρ (normalisée par rapport à la densité moléculaire ρ_{mol}) est présentée en fonction du temps. En bleu est coloré l'intervalle entre les valeurs maximales et minimales de la densité de plasma, amplifié 10 fois. Les points noirs indiquent les moments correspondant aux figures (a) à (d).

au-dessus du seuil d'ablation laser [9, 97, 36, 98, 72, 94, 7]. Toutefois, ils n'ont jamais pu être décrits par un unique modèle, analytique ou numérique. Le premier est associé au comportement de type-d dans la théorie de Sipe, tandis que le second, $\Lambda_{\perp} \sim \lambda/2n$, n'est pas présent dans cette théorie. Il existe également le modèle nanoplasmonique [80, 24, 18, 17] qui peut expliquer comment ce type de structure peut se former, mais est limité à ce patron unique. Le fait que l'on puisse observer ces deux types de structures dans une même simulation (voir la figure 5.5) est alors tout à fait remarquable. Une analyse plus complète de ces résultats et une description des mécanismes sous-jacents sont présentées à la section 5.3.2.

5.3.2 Le rôle des réflexions sur le plasma inhomogène

Au début de l'interaction simulée (voir la figure 5.5) entre l'impulsion laser et la surface du matériau, la densité du plasma est trop basse pour que les propriétés optiques du matériau ne soient significativement modifiées. Dans ce régime, la théorie de Sipe [88] est applicable et décrit correctement l'organisation des premières structures périodiques dans le plasma en

formation. Le comportement prédit par la théorie pour le matériau qui est toujours transparent est celui de type-d, soit $\Lambda_{\parallel} \sim \lambda/n$ [voir la figure 5.5(a)]. La rétroaction intra-impulsion commence à devenir importante, à mesure que la densité du plasma augmente. On observe alors ces premières structures disparaître graduellement [voir les figures 5.5(b)-(d)], pour ultimement laisser place aux nouvelles structures avec $\Lambda_{\perp} \sim \lambda/2n$. Cette transition particulière d'un type de structures à un autre est une conséquence directe de l'inclusion d'une boucle de rétroaction intra-impulsion dynamique dans le modèle (voir la section 5.3).

Dans la littérature, on explique la formation de ce type de structures ($\Lambda_{\perp} \sim \lambda/2n$) à l'aide du modèle nanoplasmonique. Celui-ci s'appuie sur la présence d'irrégularités nanométriques dans le volume du matériau, plutôt que les irrégularités de surface du modèle de Sipe. Autour de ces irrégularités, des maxima locaux dans la densité de plasma (nanoplasmas ou points chauds) se forment lors de l'irradiation. L'impulsion laser subit ensuite des réflexions longitudinales sur ces points chauds, causant l'apparition d'ondes stationnaires le long de l'axe de propagation. Finalement, les nanostructures de plasma croissent le long de ces ondes stationnaires. Bien que ce modèle puisse effectivement décrire le mécanisme de formation de ces structures, il ne semble pas pouvoir expliquer les résultats de la figure 5.5, car le volume du diélectrique est parfaitement uniforme et ne présente pas ces irrégularités du modèle nanoplasmonique. Des points chauds similaires à ceux décrits plus haut pourraient se former directement sous la surface rugueuse, mais alors les ondes stationnaires se formeraient au-dessus de la surface, hors du matériau.

On peut vérifier que les structures de la figure 5.5 ne se sont pas formées suivant le mécanisme décrit par le modèle nanoplasmonique. Pour tester l'importance des réflexions longitudinales dans les résultats de simulations obtenus à la section 5.3.1, on a exclu la composante z des courants libres \vec{J}_f sur toute la durée d'une nouvelle simulation. Outre cette modification, la simulation est identique à celle de la figure 5.5. Sans cette composante z , il ne peut y avoir de réflexions longitudinales de l'impulsion laser sur le plasma. La configuration finale des structures de plasma obtenue avec cette nouvelle simulation est présentée à la figure 5.6(a). Il s'agit des mêmes caractéristiques que le cas précédant [voir la figure 5.5(d)], avec $\Lambda_{\perp} \sim \lambda/2n$. On peut alors conclure que les réflexions longitudinales, que l'on croyait précédemment nécessaires à la formation de ce type de structures [80], ne sont pas responsables de l'auto-reconfiguration observée.

Les réflexions transversales, le long des axes x et y , peuvent également être retirées de la simulation en moyennant les courants libres $\vec{J}_f(x, y, z)$ sur tous les plans (x, y) . Spécifiquement, à chaque itération temporelle de la simulation et pour chaque valeur discrète de z , on calcule la moyenne de la composante x de \vec{J}_f et on remplace toutes les valeurs de cette composante par la moyenne obtenue. Faisant de même pour la composante y , cela a pour

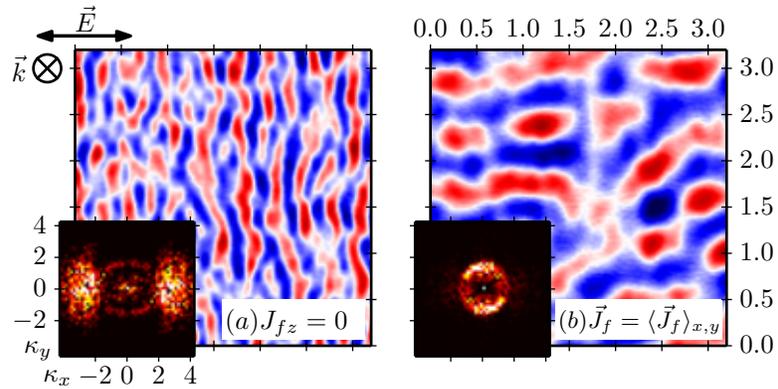


FIGURE 5.6 – Structures périodiques dans les variations de densité du plasma $\rho(x, y, z)$ (minimum en bleu et maximum en rouge) quand sont inhibées les réflexions (a) longitudinales ou (b) transversales. L’auto-reconfiguration observée à la figure 5.5 se produit toujours sans réflexions longitudinales, mais ne se produit plus quand les réflexions transversales sont retirées.

effet d’enlever toute variation le long des directions transversales dans la réponse du plasma sur le champ. Autrement dit, les réflexions transversales sont inhibées. La configuration finale des structures de plasma obtenue avec cette méthode est présentée à la figure 5.6(b) : on remarque que l’auto-reconfiguration ne s’est pas produite. Ainsi, les réflexions transversales jouent un rôle prépondérant dans le processus de réorganisation, au contraire des réflexions longitudinales.

On sait désormais que les réflexions transversales sur les maximums locaux du plasma inhomogène jouent un rôle crucial dans le processus d’auto-reconfiguration. On cherche maintenant à comprendre comment ces réflexions peuvent amener le plasma à se réorganiser ainsi. Puisque le phénomène est assez complexe, la figure 5.7 a été préparée afin d’illustrer les étapes du processus d’auto-reconfiguration.

1. Les premières structures de plasma se forment parallèlement à la polarisation du laser, avec $\Lambda_{\parallel} \sim \lambda/n$, en accord avec la théorie de Sipe qui prédit ce comportement de type-d. À la figure 5.7(a) est montrée une coupe transversale de ces structures, dans le plan (y, z) . Dans ce plan, la lumière se propage du haut ($z = 0$) vers le bas ($+z$) et les maxima locaux du plasma inhomogène sont très bien visibles en rouge. Ces derniers étant plus opaques que les minimums en bleu, on peut imaginer qu’ils agissent dans une certaine mesure comme des guides d’onde, comme ce fut suggéré quelques fois [74, 16].
2. Un couplage prend place entre ces guides d’onde et la lumière transmise dans le matériau. Puisque la polarisation du laser incident est orientée le long de l’axe x , le champ électrique est transversal au plan (y, z) de la figure 5.7(a) et les modes de résonance de

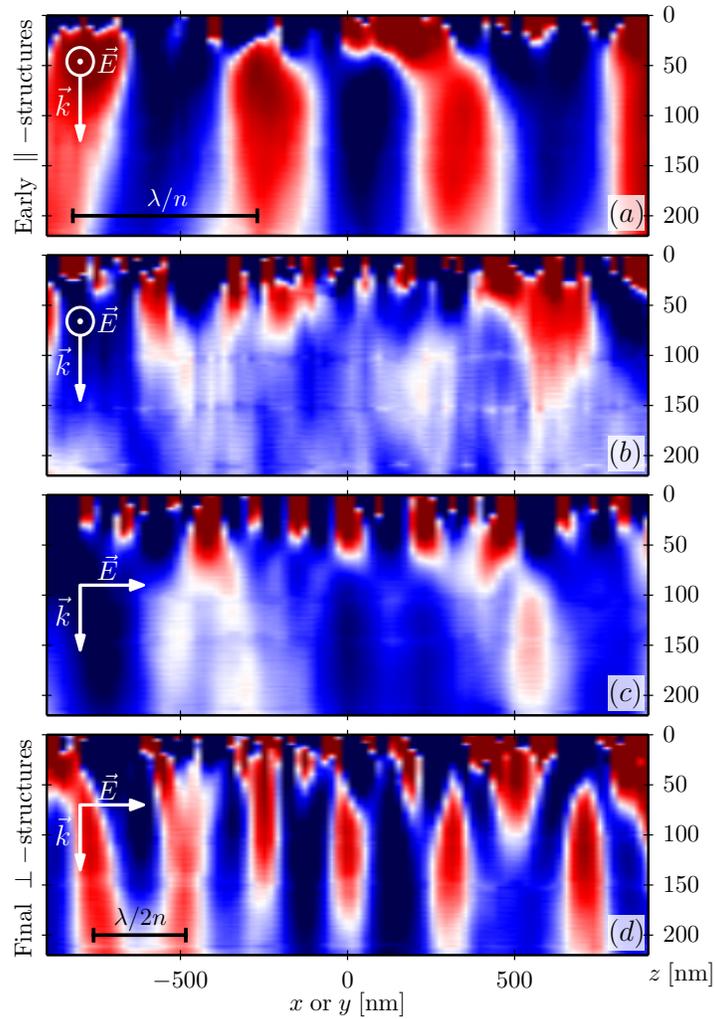


FIGURE 5.7 – Vue transversale des variations relatives de la densité de plasma (minimum en bleu et maximum en rouge) pour la même simulation que pour la figure 5.5 où on observe le phénomène d’auto-reconfiguration. En (a), une coupe le long de l’axe y dans la densité de plasma vers le début de la simulation montre les premières structures parallèles à la polarisation ($\Lambda_{\parallel} \sim \lambda/n$). En (b), la même coupe à la fin de la simulation montre que les structures de plasma dans cette orientation sont disparues, résultant en une distribution uniforme qui est un équilibre stable en présence d’une boucle de rétroaction négative (suppression). En (c), une coupe dans la direction orthogonale, le long de l’axe x , au début de la simulation montre qu’il n’y a initialement aucune structures apparentes à $z > 50$ nm. En (d), la même coupe à la fin de la simulation montre les structures auto-organisées ($\Lambda_{\perp} \sim \lambda/2n$) qui sont apparues, à cause de la présence d’une boucle de rétroaction positive (renforcement).

ce couplage qui devraient apparaître sont des modes TE (*Transverse Electric*). Un guide d'onde formé de deux maxima locaux consécutifs dans la densité de plasma est schématisé à la figure 5.8(a), ainsi que le mode fondamental TE_1 . Puisque le mode TE_1 est le mode fondamental, on ignore les autres qui devraient être moins importants.

3. Le mode TE_1 a une intensité maximale au centre du guide d'onde, là où la densité du plasma est minimale. À l'inverse, l'intensité est minimale là où la densité du plasma est maximale. Cette inversion est responsable de la disparition graduelle des premières structures [voir la figure 5.7(b)]. Puisque l'ionisation est plus importante là où le champ est plus intense, la formation de plasma devient plus importante là où la densité du plasma est plus faible. Un équilibre stable s'installe alors autour d'une distribution homogène du plasma, car dès qu'un minimum apparaît, le champ y devient plus intense et y cause plus d'ionisation. En résumé, dans le plan (y, z) , la rétroaction entre le champ et le plasma est négative ce qui inhibe les structures parallèles à la polarisation du laser incident.
4. Dans le plan orthogonal (x, z) , le phénomène inverse prend place. Sauf pour des structures de type-r directement sous la surface ($z < 50$ nm), la distribution du plasma est initialement plutôt homogène [voir la figure 5.7(c)]. Tandis qu'un équilibre stable s'installe autour d'une distribution homogène dans l'autre plan (y, z) [voir la figure 5.7(b)], l'équilibre initial dans ce plan (x, z) devient graduellement instable. Cet équilibre est instable, car dans ce plan, c'est le champ magnétique qui est transversal et le mode de résonance fondamental est le mode TM_1 (*Transverse Magnetic*), illustré à la figure 5.8(b). Cette fois, les maxima du champ et de la densité de plasma correspondent spatialement et la rétroaction est positive.
5. Puisque la distribution homogène initiale est en équilibre instable, il est inévitable qu'une fluctuation aléatoire déclenche éventuellement la formation de maxima locaux qui sont ensuite amplifiés jusqu'à ce que des structures telles que celles de la figure 5.7(d) apparaissent.

En résumé, les premières structures ($\Lambda_{\parallel} \sim \lambda/n$) se forment tel que décrit par la théorie standard de Sipe, lorsque la densité de plasma est trop faible pour causer une rétroaction significative. Quand le plasma commence à approcher sa densité critique, des réflexions transversales entraînent la formation de modes de résonance transversaux. Une boucle de rétroaction négative entre les premières structures parallèles à la polarisation et le mode TE_1 inhibe et efface ces premières structures. Simultanément, des structures perpendiculaires à la polarisation sont amplifiées par une boucle de rétroaction positive avec le mode TM_1 [voir, à nouveau, la figure 5.5(a)-(d) pour la transition].

Cette combinaison particulière de rétroaction négative ou positive et d'équilibre stable ou

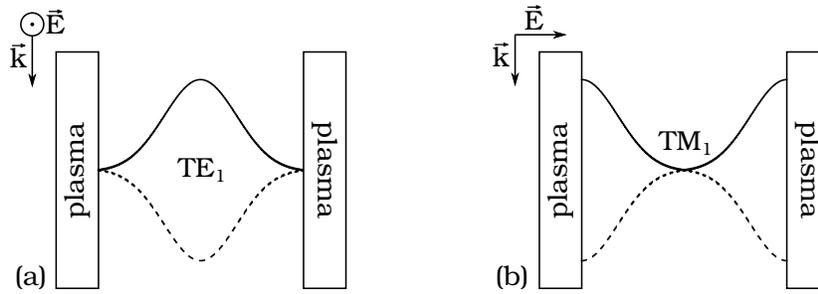


FIGURE 5.8 – Mode de résonance fondamental pour un guide d’ondes bidimensionnel pour (a) un champ électrique transversal, ou (b) un champ magnétique transversal. La direction de propagation est du haut vers le bas et les parois des guides d’ondes sont constituées de plasma dense. En (a), le mode TE_1 présente une intensité lumineuse maximale au centre du guide et en (b), le mode TM_1 présente une intensité lumineuse maximale près des guides.

instable explique le changement d’orientation des structures. À la prochaine section, le changement de périodicité est expliqué et on discute des caractéristiques des diverses structures observées en fonction des paramètres du modèle.

5.3.3 Caractéristiques des structures de plasma

On étudie maintenant comment se forment et s’organisent les différentes structures de plasma en fonction de la fluence du laser incident et de la profondeur dans le matériau irradié. Pour mesurer précisément la périodicité des structures périodiques (Λ_{\perp} ou Λ_{\parallel}), le rapport signal sur bruit dans les transformées de Fourier (TF) de la densité de plasma est améliorée en répétant chaque simulation 100 fois (avec une nouvelle rugosité de surface aléatoire) et en moyennant les TFs. On trouve ensuite les valeurs maximales le long des axes κ_x et κ_y pour calculer les périodes dominantes $\Lambda_{\perp} = \lambda/(\kappa_x|_{\max})$ et $\Lambda_{\parallel} = \lambda/(\kappa_y|_{\max})$. Les résultats sont présentés à la figure 5.9, pour différentes fluences entre 1 et 6 J/cm².

Il est clair que la nature des structures de plasma finales changent qualitativement de façon importante autour d’une fluence seuil $F_{th} \sim 2$ J/cm². Sous ce seuil, la rétroaction est faible et le modèle de Sipe s’applique. Dans ce régime, on observe deux types de structures distinctes. Pour $z < 50$ nm, on trouve des structures avec $\Lambda_{\perp} \ll \lambda$ (I), aussi présentes dans la théorie de Sipe (comportement de type-r) [88] et dans des simulations FDTD sans rétroaction intra-impulsion [90]. La présence de ces structures (I) est attribuée au patron d’interférence en champ proche entre le champ incident et le champ diffusé par la rugosité de surface [112].

Plus profondément sous la surface de matériau, pour $z > 50$ nm, les structures ont plutôt une périodicité de $\Lambda_{\parallel} \sim \lambda/n$ (III), aussi présentes dans la théorie de Sipe (comportement de type-d) et dans les simulations sans rétroaction [voir la figure 5.1(b)]. Les caractéristiques des ces structures (III) sont bien décrites par le patron d’interférence en champ lointain entre

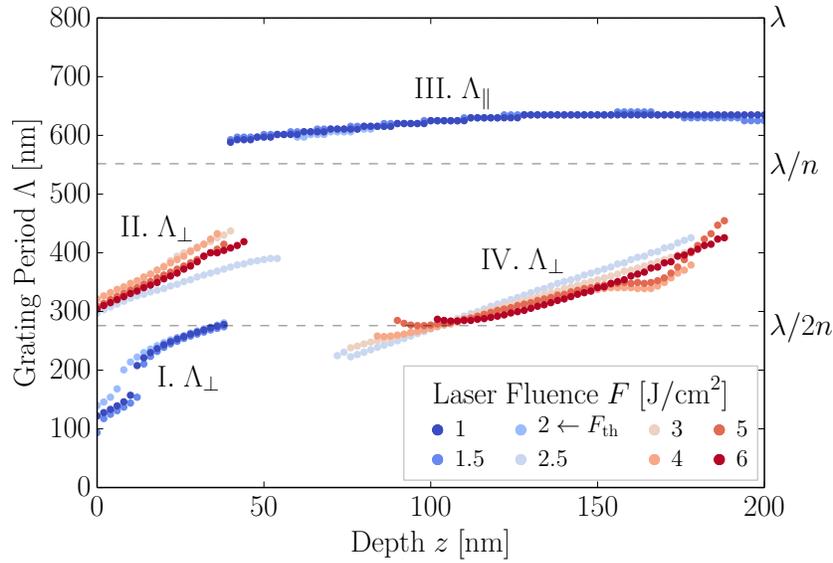


FIGURE 5.9 – Les périodes Λ des structures de plasma en fonction de la profondeur sous la surface après l’irradiation par une impulsion laser de la fluence indiquée par la couleur correspondante. En bleu sont les cas pour lesquels $F \leq F_{\text{th}} \sim 2 \text{ J/cm}^2$ et la rétroaction intra-impulsion ne joue pas un rôle important. Les deux types de structures qualitativement distincts, indiqués par I et III, correspondent respectivement aux comportements de type-r et type-d de la théorie de Sipe. En rouge sont les cas pour lesquels $F > F_{\text{th}} \sim 2 \text{ J/cm}^2$ et la rétroaction intra-impulsion est importante. C’est ici que la théorie de Sipe (et même Sipe-Drude) échoue. Les deux nouveaux types de structures auto-organisées sont indiqués par II et IV. Voir la figure 5.10 pour visualiser les quatre types de structures de plasma dans l’espace de Fourier.

le champ incident et les ondes diffusées par la rugosité de surface en milieu transparent. Un exemple représentatif de chacune des quatre familles de structures observées est montré dans l’espace de Fourier à la figure 5.10.

Au-dessus du seuil $F > F_{\text{th}}$, les deux types de structures (I et III) changent de périodicité pour $\Lambda_{\perp} \sim \lambda/2n$ (II et IV). Tel que démontré à la section 5.3.2, l’auto-reconfiguration des structures de plasma est dominée par des réflexions transversales. L’explication naturelle pour cette période spécifique est alors la formation d’ondes stationnaires le long de l’axe x [16]. La lumière redirigée dans les directions $-x$ et $+x$ interfère pour former ces ondes stationnaires qui ont des maxima d’intensité séparés d’une demie longueur d’onde $\lambda/2n$. Puis, le mécanisme de rétroaction positive décrit à la section 5.3.2 amplifie des structures de plasma ayant cette périodicité.

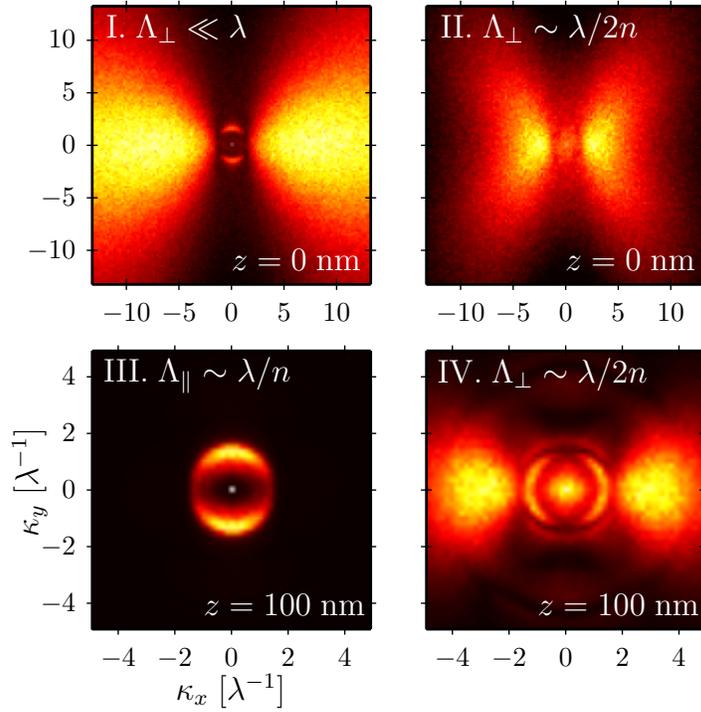


FIGURE 5.10 – Les quatre types de structures observées dans la distribution de la densité de plasma, identifiés à la figure 5.9, visualisées dans l’espace de Fourier. Les cas I et III sont représentatifs des structures obtenues sous le seuil $F \leq F_{\text{th}} \sim 2 \text{ J/cm}^2$. Les cas II et IV sont représentatifs des structures obtenues quand $F > F_{\text{th}} \sim 2 \text{ J/cm}^2$, après l’auto-reconfiguration du plasma. Les résultats sont une moyenne de 100 simulations pour réduire le niveau de bruit.

5.3.4 Robustesse

Dans cette section, on discute de la robustesse du mécanisme d’auto-reconfiguration décrit à la section 5.3.2. Pour vérifier que les résultats obtenus ne sont pas une conséquence d’un choix précis de paramètres, plusieurs simulations ont été effectuées dans un espace de paramètres plus vaste. Avec des longueurs d’onde λ entre 400 et 1200 nm, des durées d’impulsion τ entre 5 et 250 fs, des taux d’amortissement du plasma γ entre 10^{14} et 10^{16} s^{-1} et des masses réduites m_r entre $0.5m_e$ et $1.0m_e$, on trouve que l’auto-reconfiguration se produit systématiquement quand $F > F_{\text{th}}$. Les changements de paramètres peuvent affecter la valeur de la fluence seuil F_{th} , mais la présence de la reconfiguration au-delà du seuil n’est pas affectée.

Tel que discuté au chapitre 2, il y a des désaccords dans la littérature sur la nature du mécanisme dominant dans un diélectrique irradié par une source laser intense sur une échelle temporelle plus courte qu’une picoseconde. Certains pensent que le plasma provient principalement de l’ionisation par impact et d’autres sont adeptes de l’ionisation par rayonnement. Dans les simulations des dernières sections, où on a observé le processus d’auto-reconfiguration,

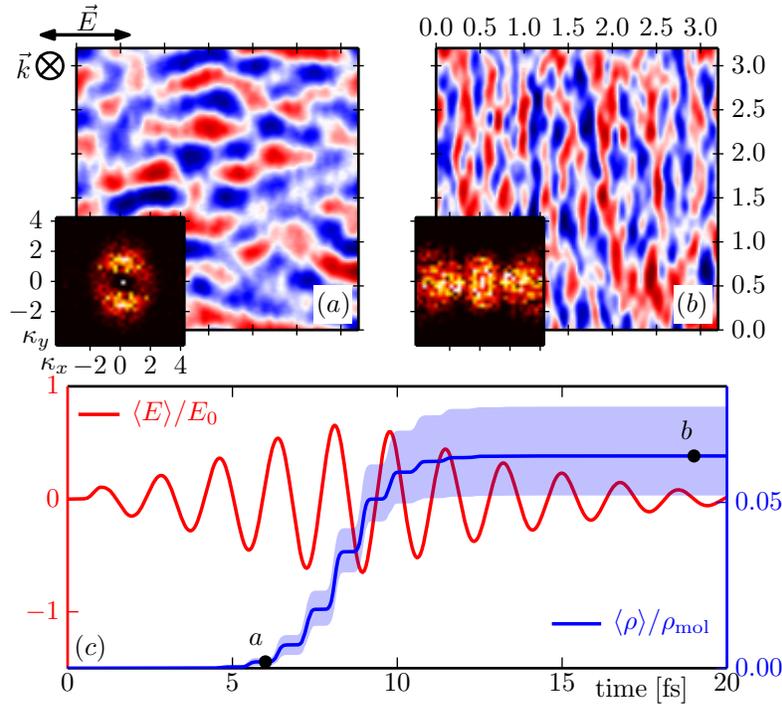


FIGURE 5.11 – [(a) et (b)] : Évolution temporelle des variations spatiales dans la densité du plasma $\rho(x, y, z)$ (minimum en bleu et maximum en rouge) à la profondeur $z = 140$ nm sous la surface rugueuse irradiée par une impulsion laser de durée $\tau = 10$ fs et de fluence $F = 7$ J/cm² (voir l'illustration du domaine de simulation à la figure 5.4). La simulation est en tout point identique à celle de la figure 5.5, sauf que l'ionisation par rayonnement est l'unique mécanisme de formation de plasma et que la fluence laser est plus grande pour compenser et atteindre une densité finale semblable. On observe que, de (a) à (b), l'auto-reconfiguration des structures s'est bien produite, malgré que la formation de plasma soit dominée par un mécanisme d'ionisation différent. Les figures superposées montrent les transformées de Fourier pour la figure correspondante. En (c) est présentée l'évolution en fonction du temps de la valeur moyenne de l'amplitude du champ électrique E (normalisée par rapport à E_0) et de la valeur moyenne de la densité du plasma ρ (normalisée par rapport à la densité moléculaire ρ_{mol}). En bleu est coloré l'intervalle entre les valeurs maximales et minimales de la densité de plasma, amplifié 10 fois. Les points noirs indiquent les moments correspondant aux figures (a) et (b).

l'ionisation par impact est le mécanisme de formation du plasma dominant. Mais on peut aisément vérifier que ce processus est toujours possible dans le cas inverse en retirant l'ionisation par impact d'une nouvelle simulation avec $\alpha = 0$ dans l'équation (2.15). Les résultats de la figure 5.11 confirment que le processus d'auto-reconfiguration se produit toujours, malgré un mécanisme de formation du plasma très différent.

5.4 Conséquences du décalage de l'avalanche d'ionisations sur la reconfiguration

Le modèle d'ionisation utilisé dans ce chapitre est le modèle à taux simple (SRE) présenté à la section 2.3.1. La différence principale entre ce modèle et les modèles à taux multiples (MRE) ou à taux décalés (DRE) est la présence d'un décalage temporel entre l'irradiation laser et l'ionisation collisionnelle. Ce décalage est inexistant dans le modèle SRE, ce qui est une simplification de la réalité, car les porteurs de charge responsables des ionisations par impact doivent avoir une énergie minimale qui requiert un certain temps à accumuler.

En utilisant le modèle SRE, ce décalage temporel n'a alors pas été pris en compte dans les simulations du processus d'auto-reconfiguration. Pourtant, un décalage est potentiellement problématique, car cela pourrait réduire l'importance de la rétroaction intra-impulsion entre le champ électromagnétique et le plasma. Par exemple, si le décalage est plus grand que la durée d'impulsion du laser, la boucle de rétroaction serait alors inexistante, car aucun plasma ne serait présent sur toute la durée de l'irradiation et, inversement, tout le plasma serait formé après le passage de l'impulsion et laser. Il ne peut alors pas y avoir d'interactions dynamiques entre la source lumineuse et le plasma.²

Cette observation a alors motivé l'utilisation du modèle MRE (voir la section 2.3.2) dans les simulations. Les premiers résultats utilisant ce modèle prenant en compte ce décalage étaient encourageants, car l'auto-reconfiguration se produisait toujours, malgré une boucle de rétroaction affaiblie. Toutefois, le modèle MRE présente certaines difficultés qui ont à leur tour motivé le développement d'un modèle original, mieux adapté aux simulations tridimensionnelles : le modèle DRE (voir la section 2.3.3).

Finalement, en utilisant le modèle DRE, plutôt que le modèle SRE, l'auto-reconfiguration semble très peu affectée par la présence d'un délai entre l'impulsion laser et l'avalanche d'ionisation, comme le démontrent les résultats d'une simulation typique (figure 5.12).

2. Cet exemple est un peu simpliste, car on néglige l'ionisation par rayonnement qui est toujours présent et ne présente pas de décalage temporel. Donc la rétroaction ne peut être complètement inexistante, peu importe le délai de l'ionisation collisionnelle.

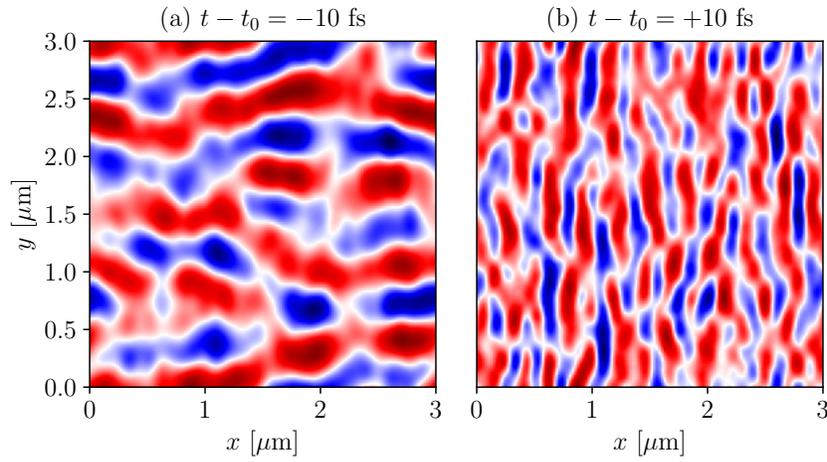


FIGURE 5.12 – Auto-reconfiguration des structures de plasma avec l'utilisation du modèle d'ionisation à taux décalés (DRE). À gauche, au début de la simulation, 10 fs avant que l'intensité lumineuse ne soit maximale, les structures ont un comportement de type-d. Puis, malgré la présence d'un délai dans le processus de l'avalanche d'ionisations, les structures se réorientent de la même façon qu'avant l'implémentation du délai (voir les figures 5.5 et 5.11). Les paramètres sont $\lambda = 800$ nm, $\tau = 10$ fs, $F = 4$ J/cm², $n = 1.45$, $\mathcal{E}_g = 9$ eV, $\gamma = 2$ fs⁻¹, $\rho_{\text{mol}} = 2 \cdot 10^{28}$ m⁻³ et $\sigma_{\text{mol}} = 10^{-19}$ m².

PyPlasma 5.1: Auto-reconfiguration avec DRE

script complet : `pyplasma/examples/capsules/5.1_self_reconfiguration_dre.py`

Les résultats de la figure 5.12 montrant l'auto-reconfiguration des motifs de plasma et utilisant le modèle d'ionisation DRE est particulièrement intéressante à reproduire en version animée. Comme référence, on inclue cette fois le script complet :

```
from pyplasma import *
set_backend('torch.cuda') # Optionnel, pour utiliser le GPU

dom = Domain(grid=[50,128,128], size=[1*um,3*um,3*um],
             pml_width=200*nm)

laser = Laser(wavelength=800*nm, pulse_duration=10*fs, fluence=4e4,
             t0=20*fs, phase=True)
dom.add_laser(laser, position='default', source_mode='tfsf')

material = Material(index=1.45, resonance=120e-9, chi3=2e-22,
                  drude_params={'damping':2e15},
                  ionization_params={'rate_equation':'dre', 'bandgap':9*eV,
                                     'density':2e28, 'cross_section':1e-19})
dom.add_material(material, boundaries={'xmin':300*nm})
surface_roughness(material, boundary='xmin', amplitude=20*nm,
                  noise='fractal', feature_size=100*nm)

dom.add_observer(Watcher('rho', x=400*nm, vlim=(0,2e28), out_step=10,
                        loop=False, fourier=True, colormap='hot'))
dom.add_observer(Watcher('rho', x=400*nm, out_step=10, loop=True))
results = dom.run(30*fs, stability_factor=0.9)
```

Chapitre 6

Auto-organisation inter-impulsion structurelle

À l'exception de la section 6.3, ce chapitre ne contient que des résultats et développements originaux. Ils n'ont toutefois pas été le sujet d'une publication et sont, à ce jour, exclusifs à cette thèse.

6.1 Motivation

Au chapitre 5, on a étudié l'interaction entre une impulsion laser et le plasma qu'elle génère dans un milieu dense et transparent. Les interactions entre les variations locales de la densité du plasma et l'intensité lumineuse permettent effectivement de déclencher une rétroaction pouvant inhiber des structures et en amplifier d'autres. On a démontré que les structures périodiques dans le profil de la densité de plasma dépendent fortement de la présence de cette boucle de *rétroaction dynamique intra-impulsion*.

La relation entre les variations locales dans le profil de la densité de plasma présentes immédiatement après l'irradiation laser et les modifications structurelles permanentes du matériau ciblé demeure toutefois spéculative. On n'a pas encore abordé comment les structures de plasma étudiées jusqu'ici se traduisent en structures inscrites à la surface de la cible irradiée. Certes, il y a déjà un bon accord entre ces structures de plasma simulées et les formes observées expérimentalement. Mais il manque encore cet élément très important pour compléter le tableau et simuler toute la boucle, de l'impulsion laser à la modification de la forme de la surface.

De plus, la formation de réseaux de surface en pratique est généralement le fruit de l'exposition de la surface d'une cible à une multitude d'impulsions laser. Jusqu'ici, seule une impulsion

laser est impliquée dans les simulations. Dans ce chapitre, on étudie ce qui se produit après l'irradiation de la première impulsion laser, puis comment différeront les interactions avec les impulsions suivantes. On verra comment peuvent croître des nanostructures périodiques sous l'influence d'une boucle de *réaction inter-impulsion*.

6.2 Incubation

Après une irradiation intense et la formation d'un plasma dense, le matériau solide doit dissiper cette énergie absorbée. Cette énergie finira ultimement en énergie thermique, mais des liaisons chimiques entre les molécules de la structure cristalline du matériau seront brisées au passage. Ces liens brisés ont une grande importance, car ils changent les propriétés optiques et mécaniques du matériau. Par exemple, ces imperfections structurelles peuvent brouiller le diagramme de bandes d'énergie et faire apparaître des *niveaux intermédiaires stables* dans la bande interdite. Le résultat est une diminution effective de la largeur de la bande interdite, car le passage entre la bande de valence et la bande de conduction est facilité par des transitions tirant avantage de ces niveaux intermédiaires. De plus, des électrons peuvent rester piégés dans ces niveaux d'énergie jusqu'à l'impulsion suivante et être très facilement ré-ionisés vers la bande de conduction beaucoup plus tôt [32, 59].

Si la dissipation de l'énergie, puis les ruptures de liens chimiques se produisent sur une échelle de temps plus longue que les impulsions laser, on peut supposer que ces effets n'ont pas d'impact sur l'interaction avec la première impulsion. Il est généralement accepté que c'est le cas pour les impulsions femtosecondes [5]. Le temps caractéristique des ruptures de liens chimiques est de l'ordre des nanosecondes, mais généralement plus court que le temps qui sépare deux impulsions laser (micro- ou millisecondes, typiquement). Ainsi, lors de l'interaction avec la seconde impulsion, la présence de niveaux intermédiaires supplémentaires dans la bande interdite peut entraîner une absorption de l'énergie plus importante encore et la formation d'un plasma plus dense qu'à l'impulsion précédente.

Graduellement, d'une impulsion à la suivante, on peut observer un accroissement de l'opacité d'un matériau qui accumule des bris structurels. Ce processus, *l'incubation*, peut entraîner une diminution de la fluence seuil de dommage du matériau. Autrement dit, la fluence seuil F_{th} est une fonction du nombre d'impulsions N . Un recensement de quelques résultats expérimentaux tiré de la littérature montrant cet effet est présenté à la figure 6.1.

Aux sections 6.3.1 et 6.3.2, on présente deux modèles d'incubation provenant de la littérature. À la section 6.4.1, on élabore un nouveau modèle adapté pour les simulations de ce chapitre, initialement simplifié pour ne tenir compte que des imperfections intrinsèques de la structure cristalline. Ce modèle est ensuite complété à la section 6.4.3 avec la création de

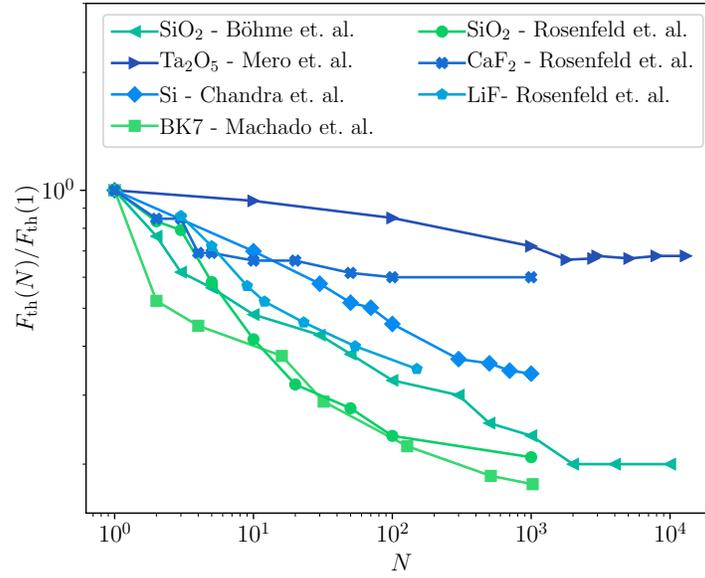


FIGURE 6.1 – Diminution relative du seuil de fluence laser en fonction du nombre d’impulsions laser N due aux effets de l’incubation. Les données expérimentales sont tirées de [19, 59, 63, 56, 79].

pièges extrinsèques.

6.3 Diminution du seuil de dommage

6.3.1 Modèle empirique

Les effets de l’incubation que subit un matériau lorsqu’il est irradié par une série d’impulsions laser peuvent être mesurés indirectement avec la diminution du seuil de fluence minimale requise pour endommager sa surface (voir la figure 6.1). Un modèle empirique [79] fréquemment utilisé pour reproduire cette diminution est basé sur l’équation

$$F_{\text{th}}(N) = F_{\text{th}}(\infty) + [F_{\text{th}}(1) - F_{\text{th}}(\infty)] e^{-\varsigma(N-1)}, \quad (6.1)$$

où ς est un paramètre libre que l’on ajuste en fonction des résultats expérimentaux. Cette équation a été développée en se basant sur l’observation par Rosenfeld *et al.* [79] d’un plateau pour les plus grandes valeurs de N . La diminution du seuil est plus importante entre les premières impulsions, puis les effets d’incubations ralentissent. Finalement, sous une fluence précise, peu importe le nombre d’impulsions laser auquel on expose la surface du matériau, aucun dommage n’y apparaîtra. On réfère à ce second seuil par $F_{\text{th}}(\infty)$.

Ce premier modèle simpliste montre toutefois une très faible capacité à reproduire les résultats expérimentaux pour les valeurs intermédiaires de N (voir la figure 6.2).

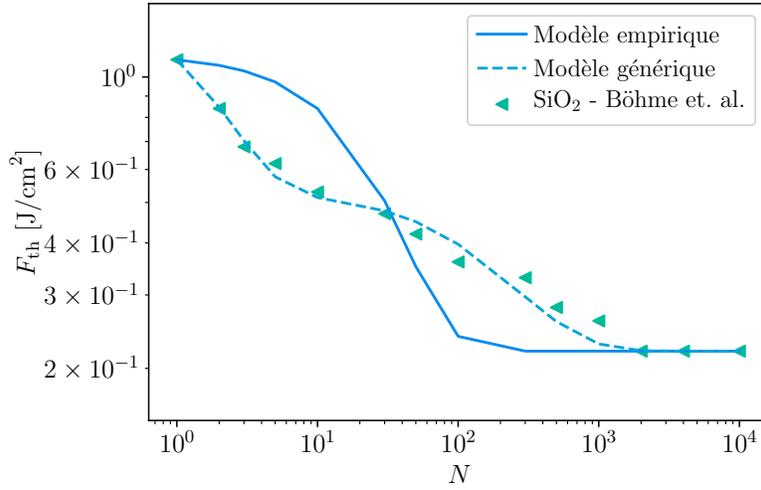


FIGURE 6.2 – Comparaison entre les seuils de fluence expérimentaux et les modèles empirique et générique. Les données expérimentales sont tirées de [19]. Le paramètre libre optimisé du modèle empirique est $\varsigma = 0.039$. Pour le modèle générique, les paramètres sont $\Delta\alpha/\alpha_0 = 1.40$, $\beta = 0.0027$ et $\gamma = 0.577$.

Les travaux sur le modèle empirique ont été poursuivis par Mero *et al.* [59] qui ont tenté d’y attribuer une justification physique, s’appuyant sur la présence de pièges dans la bande interdite. L’équation ainsi développée, légèrement différente de l’équation (6.1) est

$$F_{\text{th}}(N) = F_{\text{th}}(\infty) + [F_{\text{th}}(1) - F_{\text{th}}(\infty)] \left[1 - \frac{\gamma_S \rho_{\text{max}}(1)}{\gamma_r \rho_{S,\text{max}}} \right]^{N-1}, \quad (6.2)$$

où γ_r est le taux de recombinaison, γ_S est le taux de recombinaison pour les électrons piégés dans le piège S , $\rho_{\text{max}}(1)$ est la population de la bande de conduction maximale générée au passage de la première impulsion laser et $\rho_{S,\text{max}}$ est la population maximale dans ce piège S .

Puisque le modèle est ajusté aux données expérimentales en utilisant le rapport $\frac{\gamma_S \rho_{\text{max}}(1)}{\gamma_r \rho_{S,\text{max}}}$ comme paramètre libre, les prédictions sont alors exactement identiques que l’on utilise cette formulation ou la précédente. Le problème des pauvres performances du modèle n’est alors pas réglé, car on retombe sur un modèle identique.

Finalement, pour le lecteur intéressé, Emmert *et al.* [32] a complété ces travaux en y ajoutant, entre autres, des pièges extrinsèques, créés entre les impulsions laser. Cette nouvelle version permet de grandement améliorer l’accord entre les prédictions et les observations en laboratoire, au coût d’une complexité considérablement accrue.

6.3.2 Modèle générique

Le modèle générique proposé par Sun *et al.* [95] s’appuie sur les deux prémisses suivantes :

1. Le coefficient d'absorption α augmente en fonction du nombre d'impulsion N et de la fluence F comme

$$\frac{d\alpha}{dN} = \beta(\alpha_{\max} - \alpha)F. \quad (6.3)$$

Le coefficient d'absorption peut augmenter jusqu'à une valeur de saturation α_{\max} . Le paramètre β est libre.

2. La densité d'énergie absorbée nécessaire à l'ablation $G = \alpha F_{\text{th}}$ diminue comme

$$\frac{dG}{dN} = -\gamma(G - G_{\min})F. \quad (6.4)$$

Cette densité d'énergie diminue jusqu'à un minimum G_{\min} . Le paramètre γ est libre.

En utilisant les conditions initiales $\alpha(0) = \alpha_0$ et $G(0) = G_0$, on peut résoudre aisément ces équations. Puis, avec $F_{\text{th}}(N) \sim G(N-1)/\alpha(N-1)$, on définit $F_{\text{th}}(1) = G_0/\alpha_0$ et $F_{\text{th}}(\infty) = G_{\max}/\alpha_{\max}$ pour obtenir

$$F_{\text{th}}(N) = \frac{F_{\text{th}}(1) - \left[F_{\text{th}}(1) - F_{\text{th}}(\infty) \left(1 + \frac{\alpha_{\max} - \alpha_0}{\alpha_0} \right) \right] [1 - e^{-\gamma(N-1)}]}{1 + \frac{\alpha_{\max} - \alpha_0}{\alpha_0} [1 - e^{-\beta(N-1)}]}. \quad (6.5)$$

Les paramètres libres qui doivent être ajustés en fonction des données expérimentales sont au nombre de trois, soient $\Delta\alpha/\alpha_0 = (\alpha_{\max} - \alpha_0)/\alpha_0$, β et γ . Tel que démontré avec l'exemple de la figure 6.2, le modèle générique permet d'obtenir un bien meilleur accord avec les expériences, par rapport au modèle empirique.

6.4 Implémentation des pièges aux simulations

Dans la dernière section, on a discuté des conséquences du phénomène d'incubation qui affecte un matériau que l'on irradie à répétition avec des impulsions laser intenses. La diminution du seuil d'ablation n'a été jusqu'ici abordée que de façon *globale*, c'est-à-dire que l'échantillon irradié est toujours homogène et les dimensions spatiales ne sont pas prises en compte. Dans cette section, on souhaite étudier l'incubation *localement* et voir comment cela peut affecter les simulations des chapitres précédents où les taux d'absorption ne sont pas uniformes.

En particulier, on cherche à voir comment la formation et l'auto-organisation des structures de plasma peuvent être différentes en présence de niveaux intermédiaires dans la bande interdite (pièges), responsables de l'incubation. Par exemple, une densité inhomogène de plasma

formé lors d'une première impulsion laser entraîne une distribution inhomogène de pièges et d'électrons piégés. Lors du passage de l'impulsion laser suivante, ces variations locales pourraient être amplifiées, car les taux d'absorption et d'ionisation dépendent de la présence de ces électrons piégés.

On est alors en droit de se poser une question par rapport aux résultats du chapitre 5. Est-ce que le phénomène d'auto-reconfiguration est toujours possible lors d'une interaction multi-impulsionnelle? Un scénario impliquant de l'incubation qui pourrait empêcher ce processus est le suivant. Si on irradie la surface d'un diélectrique avec N impulsions d'une fluence $F < F_{\text{th}}(1)$, alors le plasma ne devrait pas se reconfigurer lors de la première irradiation, car le plasma n'est pas assez dense. Les structures de plasma devraient alors suivre un comportement de type-r ou de type-d (voir les cas I et III de la figure 5.9 quand $F < F_{\text{th}}$). En présence de pièges (intrinsèques ou extrinsèques), l'échantillon devrait conserver une forme de *mémoire* de ces motifs et il est possible qu'aux impulsions suivantes, ils soient particulièrement amplifiés. Si bien, que lorsque la surface aura été exposée à suffisamment d'impulsions laser pour atteindre le seuil critique, la reconfiguration des structures soit impossible.

Pour faire cette vérification, on doit alors implémenter ces pièges. Ce sera fait aux sections 6.4.1 et 6.4.3 pour les pièges intrinsèques et extrinsèques, respectivement.

6.4.1 Pièges intrinsèques

On commence par poser la notation pour les énergies et taux de transition qui sont reliés aux pièges. La figure 6.3 illustre comment ces nouvelles quantités s'inscrivent dans le modèle à deux bandes.

Pour l'instant, on se limite à un seul niveau d'énergie \mathcal{E}_t pour les pièges. Ceux-ci ont une densité D_t , correspondant à la population maximale d'électrons piégés. La population d'électrons piégés est ρ_t . Les transitions entre la bande de conduction et la bande de valence fonctionnent de la même façon que pour les chapitres précédents. Le taux d'ionisation est une fonction de la largeur de la bande interdite \mathcal{E}_g et de la densité d'électrons dans la bande de valence ρ_{VB} , ou encore

$$\nu_g = f(\mathcal{E}_g, \rho_{\text{VB}}). \quad (6.6)$$

Le taux d'ionisation dépend d'autres quantités, mais seules celles-ci ont besoin d'être explicitement écrites pour montrer comment la présence de pièges modifie cette fonction. Avec un seul niveau d'énergie pour les pièges, une méthode très simple est de garder la même fonction f pour les électrons de la bande de conduction et les électrons piégés, mais avec une population et une énergie appropriée, tel que

$$\nu = \nu_g + \nu_t = f(\mathcal{E}_g, \rho_{\text{VB}} - \rho_t) + f(\mathcal{E}_t, \rho_t), \quad (6.7)$$

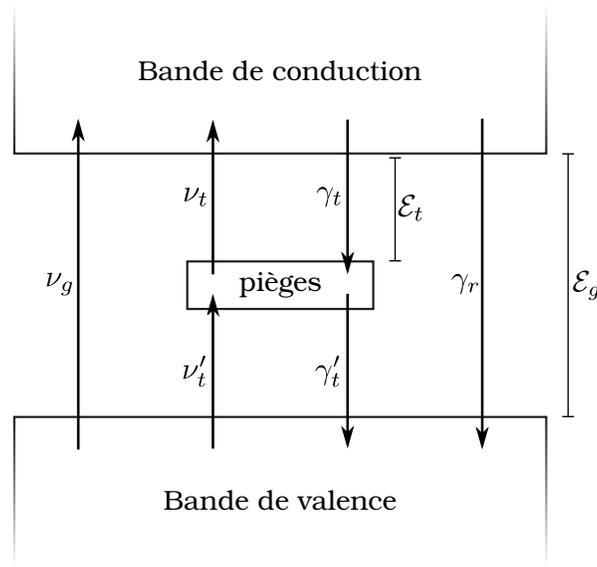


FIGURE 6.3 – Transitions entre les bandes de valence et de conduction en présence de pièges dans la bande interdite. Le taux d’ionisation entre les deux bandes est ν_g (énergie de transition \mathcal{E}_g). Les électrons de la bande de valence peuvent ensuite être piégés à un taux γ_t , puis ré-ionisés à un taux ν_t (énergie de transition \mathcal{E}_t). Le taux de relaxation de la bande de conduction vers la bande de valence est γ_r . Les électrons piégés peuvent relaxer vers la bande de valence à un taux γ'_t . Finalement, les électrons de la bande de valence peuvent être excités vers un piège à un taux ν'_t (énergie de transition $\mathcal{E}_g - \mathcal{E}_t$).

où ν est le taux total de transitions vers la bande de conduction. Une façon d’interpréter facilement cette dernière équation est qu’une partie des électrons (ceux piégés) est ionisée plus facilement, car $\mathcal{E}_t < \mathcal{E}_g$.

À la figure 6.3, on a également des transitions de la bande de valence aux pièges qui sont possibles. Pour conserver une certaine cohérence, on utilise simplement

$$\nu'_t = f(\mathcal{E}_g - \mathcal{E}_t, \rho_{VB}). \quad (6.8)$$

La fonction f encapsule le modèle d’ionisation, ce qui peut inclure l’ionisation par rayonnement avec le modèle de Keldysh par exemple (voir la section 2.2.1). Cela peut également inclure l’ionisation par impact, par exemple avec l’un des trois modèles à taux présentés à la sections 2.3. Pour ce chapitre, on utilise le modèle SRE (voir la section 2.3.1).

Les résultats d’un premier calcul impliquant des pièges sont présentés à la figure 6.4. Différentes densités de pièges D_t sont testées et on observe les populations d’électrons dans la bande de conduction et dans les pièges intrinsèques. Dans le premier cas, avec $D_t = 0$, les électrons transitionnent directement dans la bande de conduction, puis relaxent graduellement vers la bande de valence. Dans le deuxième cas, avec une faible densité de pièges,

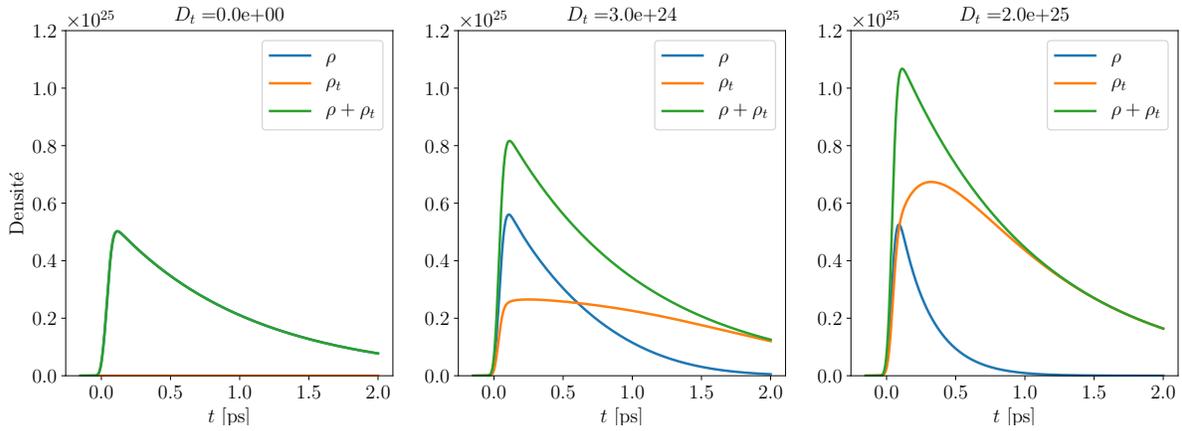


FIGURE 6.4 – Densités d’électrons dans la bande de conduction et dans les pièges intrinsèques lors d’une interaction avec une impulsion laser gaussienne pour différentes densités de pièges intrinsèques D_t . Le modèle d’ionisation est SRE (avec le coefficient $\alpha = 4 \text{ cm}^2/\text{J}$) et les paramètres sont $\lambda = 800 \text{ nm}$, $\tau = 100 \text{ fs}$, $F = 2.3 \text{ J}/\text{cm}^2$, $\mathcal{E}_g = 9 \text{ eV}$, $\mathcal{E}_t = 3 \text{ eV}$, $\gamma_t = 5 \text{ ps}^{-1}$, $\gamma_r = \gamma'_t = 1 \text{ ps}^{-1}$.

ceux-ci sont rapidement saturés. La relaxation se produit plus rapidement pour les électrons de la bande de conduction, car ils peuvent quitter cette dernière de deux façons, soit en relaxant directement vers la bande de valence à un taux γ_r ou en tombant dans un piège à un taux γ_t . Les électrons piégés semblent relaxer plus lentement, malgré que $\gamma'_t = \gamma_r$, mais c’est en réalité parce que de nouveaux électrons de la bande de valence sont continuellement piégés. Finalement, on remarque que la quantité totale d’électrons qui quittent la bande de valence ($\rho + \rho_t$) est plus grande quand la densité de pièges D_t augmente. Ceci est possible, car les transitions hors de la bande de valence sont facilitées avec $\mathcal{E}_t < \mathcal{E}_g$.

On étudie également comment ces populations évoluent en fonction de la position \mathcal{E}_t des pièges dans la bande interdite à la figure 6.5. Une différence notable est que le taux de remplissage des pièges au début de l’interaction est plus important quand \mathcal{E}_t est grande, car la transition directe entre la bande de valence et les pièges est facilitée par une faible différence d’énergie $\mathcal{E}_g - \mathcal{E}_t$ (voir la figure de droite).

6.4.2 Simulations multi-impulsionnelles

L’objectif est de simuler les interactions entre un matériau et une série d’impulsions laser. Typiquement, un laser opère à un taux de répétition qui ne dépasse que rarement les MHz. Le temps séparant deux impulsions est alors de l’ordre des microsecondes au minimum. Le pas temporel discret des simulations est de l’ordre des atto- ou femtosecondes, au maximum. On pourrait simplement simuler la première interaction, puis attendre un certain temps que

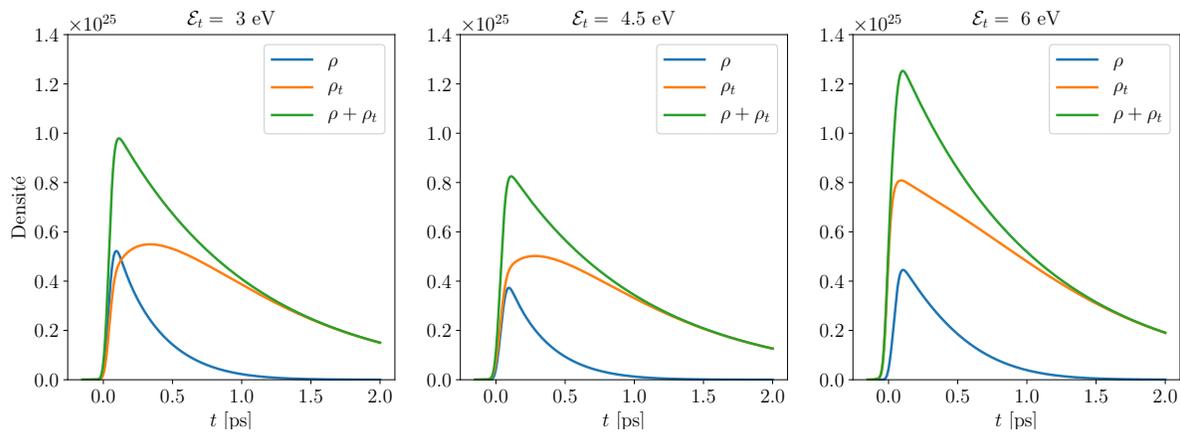


FIGURE 6.5 – Densités d’électrons dans la bande de conduction et dans les pièges intrinsèques lors d’une interaction avec une impulsion laser gaussienne pour différentes énergies \mathcal{E}_t . Le modèle d’ionisation est SRE (avec le coefficient $\alpha = 4 \text{ cm}^2/\text{J}$) et les paramètres sont $\lambda = 800 \text{ nm}$, $\tau = 100 \text{ fs}$, $F = 2.3 \text{ J/cm}^2$, $\mathcal{E}_g = 9 \text{ eV}$, $D_t = 10^{25} \text{ m}^{-3}$, $\gamma_t = 5 \text{ ps}^{-1}$, $\gamma_r = \gamma'_t = 1 \text{ ps}^{-1}$.

PyPlasma 6.1: Pièges intrinsèques

script complet : `pyplasma/examples/capsules/6.1_intrinsic_traps.py`

Les résultats des figures 6.4 et 6.5 sont obtenus en ajoutant des pièges au matériau. Après avoir créé le matériau et l’avoir ajouté au domaine, on fait :

```
Trap(material, energy=3*eV, density=1e25, trapping_rate=5e12,
      recombination_rate=1e12)
```

la simulation se stabilise après quelques picosecondes, puis envoyer une nouvelle impulsion. Mais ça demeure beaucoup trop long, car on va devoir effectuer ces calculs un grand nombre de fois dans les prochaines sections et la rapidité de calculs est un enjeu.

Une façon d’accélérer le processus est d’arrêter la simulation dès que l’ionisation est pratiquement terminée et que les électrons commencent le stade final de relaxation. Cette partie est beaucoup plus prévisible que durant l’interaction avec l’impulsion laser et ne nécessite pas la très coûteuse méthode FDTD. Connaissant les populations des électrons dans la bande de conduction et dans les pièges à un temps donné et sachant que ceux-ci ne peuvent plus que relaxer vers un niveau plus bas, on peut résoudre ce problème en le remplaçant par un problème équivalent, mais plus simple.

Soit un ensemble de N_{box} boîtes (représentant les pièges) et un ensemble de n_b balles (représentant les électrons). Une boîte peut être vide ou contenir une balle. Une à la fois, on

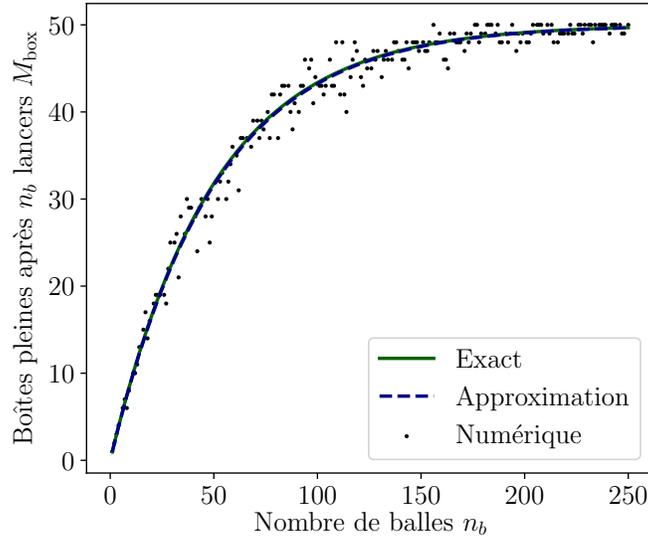


FIGURE 6.6 – Nombre de boîtes remplies après n_b lancers de balles, calculé numériquement ou analytiquement (solution exacte ou approximée). Le nombre de boîtes, vide ou pleine, est $N_{\text{box}} = 50$.

lance, de façon aléatoire, chaque balle vers une boîte quelconque, sans savoir si cette dernière est déjà remplie. Si elle est vide, la balle reste dans la boîte, sinon, la balle tombe à côté. Finalement, après avoir lancé toutes les balles, on compte le nombre de boîtes remplies, M_{box} .

Le calcul numérique pour ce problème est élémentaire et les solutions pour $N_{\text{box}} = 50$ sont illustrées par des points à la figures 6.6. Toutefois, une solution analytique et continue serait bien plus pratique pour transposer ceci au problème original des pièges à électrons.

Avec un nombre discret de balles, on peut facilement se convaincre que

$$M_{\text{box}} = N_{\text{box}} \left[1 - \left(\frac{N_{\text{box}} - 1}{N_{\text{box}}} \right)^{n_b} \right]. \quad (6.9)$$

La courbe verte de la figure 6.6 montre que cette solution reproduit bien les solutions numériques. Avoir le nombre de balles n_b en exposant dans cette solution peut toutefois poser problème en générant des nombres trop grands pour un ordinateur. On peut alors utiliser

$$\lim_{N_{\text{box}} \rightarrow \infty} \left(\frac{N_{\text{box}} - 1}{N_{\text{box}}} \right)^{n_b} = \lim_{N_{\text{box}} \rightarrow \infty} \left(1 - \frac{1}{N_{\text{box}}} \right)^{n_b}, \quad (6.10a)$$

$$\approx e^{-n_b/N_{\text{box}}}, \quad (6.10b)$$

afin d'approximer la solution analytique par

$$M_{\text{box}} = N_{\text{box}} \left(1 - e^{-n_b/N_{\text{box}}} \right). \quad (6.11)$$

Cette approximation est testée et validée à la figure 6.6. Le nombre de balles n_b est toujours dans un exposant, mais cette fois, il est divisé par le nombre de boîtes qui devrait rester d'un ordre de grandeur similaire.

Si on transpose cette solution au problème d'origine, soit une population d'électrons dans la bande de conduction qui tombent dans des pièges ou relaxent vers la bande de valence, on obtient

$$\Delta\rho_t = (D_t - \rho_t) \left[1 - \exp\left(-\frac{\gamma_t}{\gamma_t + \gamma_r} \frac{\rho}{D_t - \rho_t}\right) \right]. \quad (6.12)$$

Ainsi, la densité de pièges initialement vides ($D_t - \rho_t$) correspond au nombre de boîtes. La quantité correspondant au nombre de balles n_b est la densité d'électrons dans la bande de conduction ρ , multipliée par le rapport $\gamma_t/(\gamma_t + \gamma_r)$ pour prendre en compte la proportion des électrons qui vont directement relaxer vers la bande de valence. La quantité $\Delta\rho_t$, analogue aux boîtes pleines M_{box} , correspond à la densité de nouveaux pièges pleins, que l'on ajoute à la valeur initiale de pièges pleins ρ_t .

Finalement, si on souhaite prendre en compte la relaxation des électrons piégés vers la bande de valence entre les impulsions, on doit multiplier la nouvelle densité de pièges occupés ($\rho_t + \Delta\rho_t$) par $e^{-\gamma'_t \Delta t}$, où Δt est le temps entre deux impulsions laser.

En résumé, voici la procédure employée pour les simulations multi-impulsionnelles :

1. Simulation de l'interaction et de la formation de plasma avec la N ième impulsion laser.
2. Dès que la formation de plasma est terminée, on mesure les valeurs pour la densité du plasma ρ et la densité de pièges occupés ρ_t .
3. Avec l'équation (6.12), on calcule la densité d'électrons qui tombent dans un piège.
4. La densité du plasma est réinitialisée à zéro.
5. La densité d'électrons piégés est mise à jour avec la valeur $\rho_t \rightarrow (\rho_t + \Delta\rho_t)e^{-\gamma'_t \Delta t}$.
6. On répète les étapes pour la $(N + 1)$ ième impulsion.

À la figure 6.7, on observe comment la densité du plasma, qui se forme à chaque nouvelle impulsion peut augmenter graduellement en présence de pièges intrinsèques. Toutefois, ce maximum se stabilise quand les pièges deviennent saturés. Dans l'exemple de la figure 6.7, quand la densité d'électrons piégés sature vers la valeur $\rho_t \sim 10^{26} \text{ m}^{-3} = D_t$, la densité maximale du plasma arrête d'augmenter et stabilise vers $\rho \sim 1.7 \cdot 10^{26} \text{ m}^{-3}$. On peut alors identifier trois régimes.

— $F > F_{\text{th}}(1)$: La densité critique est atteinte dès la première impulsion laser.

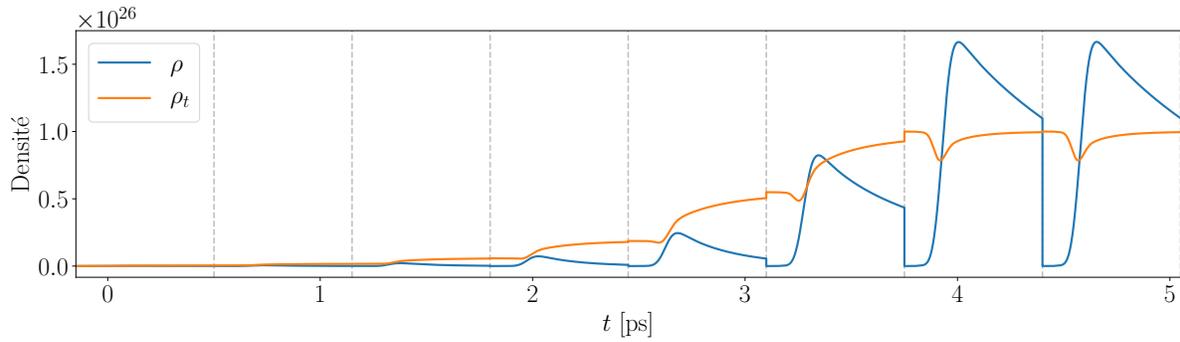


FIGURE 6.7 – Accumulation d’électrons piégés au cours d’une interaction avec $N = 8$ impulsions laser. Les lignes verticales indiquent les séparations entre les simulations, où chacune correspond à une impulsion laser. Le temps entre les simulations a été réduit à zéro pour construire l’axe temporel. Le modèle d’ionisation est SRE (avec le coefficient $\alpha = 4 \text{ cm}^2/\text{J}$) et les paramètres sont $\lambda = 800 \text{ nm}$, $\tau = 100 \text{ fs}$, $F = 2 \text{ J}/\text{cm}^2$, $\mathcal{E}_g = 9 \text{ eV}$, $\mathcal{E}_t = 3 \text{ eV}$, $D_t = 10^{26} \text{ m}^{-3}$, $\gamma_t = 5 \text{ ps}^{-1}$, $\gamma'_t = 0 \text{ ps}^{-1}$, $\gamma_r = 1 \text{ ps}^{-1}$.

- $F_{\text{th}}(1) > F > F_{\text{th}}(\infty)$: Avec l’assistance des effets de l’incubation, la densité critique est atteinte après $1 < N < \infty$ impulsions laser.
- $F < F_{\text{th}}(\infty)$: La densité de plasma maximale se stabilise sous le seuil critique et ne le dépassera pas.

Ce dernier régime explique l’observation d’un plateau dans les résultats expérimentaux de $F_{\text{th}}(N)$, car sous une certaine fluence, le nombre d’impulsions N n’importe plus.

PyPlasma 6.2: Accumulation d’électrons piégés

script complet : `pyplasma/examples/capsules/6.2_trapped_electron_accumulation.py`

Pour reproduire la figure 6.7, on fait une série de simulations dans une boucle, chacune pour une nouvelle impulsion laser. Les pièges sont ajoutés de la même façon qu’avant :

```
trap = Trap(material, energy=3*eV, density=1e26, trapping_rate=5e12)
```

La différence est que cette fois, on utilise l’équation (6.12) pour calculer la densité d’électrons piégés, que l’on ré-injecte dans la simulation suivante avec :

```
trap.trapped = trapped_electron_density
```

On tente maintenant de reproduire cette courbe de fluence seuil $F_{\text{th}}(N)$ avec les simulations. Pour chaque valeur de N , on commence par choisir une valeur arbitraire de fluence F et on simule une interaction de N impulsions. À la fin, on compare la valeur maximale de ρ avec

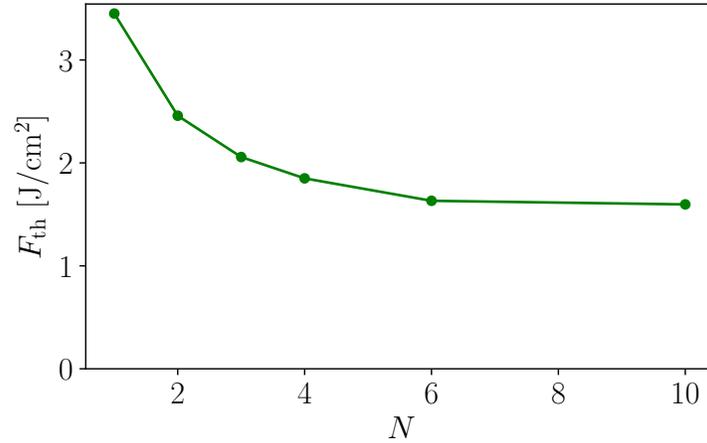


FIGURE 6.8 – Simulation de la diminution de la fluence seuil en fonction du nombre d’impulsions laser due à la présence de pièges intrinsèques. Les paramètres sont $\lambda = 800$ nm, $\tau = 100$ fs, $\mathcal{E}_g = 9$ eV, $\mathcal{E}_t = 3$ eV, $D_t = 10^{27}$ m⁻³, $\gamma_t = 5$ ps⁻¹, $\gamma'_t = 0$ ps⁻¹, $\gamma_r = 1$ ps⁻¹.

la densité critique ρ_c [voir l’équation (2.36)]. Si on a dépassé cette valeur critique, on tente à nouveau avec une fluence plus petite, ou inversement une fluence plus grande si on n’a pas dépassé le seuil. On converge ensuite graduellement vers une valeur de plus en plus précise pour F_{th} pour laquelle la densité du plasma maximale est la plus proche possible de la densité critique. En une douzaine de tentatives, on peut réduire l’erreur maximale à environ 1%. La figure 6.8 est obtenue avec cette méthode.

Le seuil de fluence F_{th} diminue bien quand on augmente le nombre d’impulsions laser N , jusqu’à un certain point où on atteint un plateau. Toutefois, le plateau est atteint très rapidement, après 6 impulsions laser dans ce cas précis. C’est beaucoup plus rapide que ce que les expériences suggèrent (voir la figure 6.1 où les plateaux sont atteints vers $N = 10^2 - 10^3$). Due à la nature exponentielle du modèle actuel, on a peu de contrôle sur le nombre d’impulsions qui précèdent ce plateau. C’est pourquoi on introduit les pièges extrinsèques à la prochaine section, qui vont permettre un contrôle supplémentaire.

6.4.3 Création de pièges extrinsèques

À la dernière section, on a introduit des pièges intrinsèques, présents dans la bande interdite avant la première irradiation laser. Ceux-ci peuvent accumuler une population d’électrons piégés d’une impulsion à l’autre, jusqu’à saturation. La densité de pièges D_t est le paramètre principal qui détermine la hauteur du plateau dans la relation entre le seuil de fluence F_{th} et le nombre d’impulsions N . Afin d’obtenir un plateau à une hauteur relative similaire à ce qui est observé en laboratoire, il faut choisir une valeur élevée pour D_t . Puisque l’accumulation d’électrons dans ces pièges est exponentielle, on atteint rapidement la saturation et on a peu

de contrôle sur ce comportement.

Afin d'avoir un certain contrôle à la fois sur la vitesse de saturation et sur la hauteur du plateau, on introduit la notion de pièges extrinsèques. Ces derniers sont causés par une dégradation graduelle de la structure du matériau après chaque irradiation. Puisqu'on distingue maintenant deux types de pièges, on définit leurs densités séparément, D_t^i et D_t^e pour les densités intrinsèques et extrinsèques, respectivement. Pour une simulation donnée, la densité de pièges totale est $D_t = D_t^i + D_t^e$. La seule étape supplémentaire à ajouter aux simulations multi-impulsionnelles est la création de nouveaux pièges extrinsèques, en augmentant la valeur de D_t^e entre chaque impulsion laser, tandis que D_t^i demeure fixe.

Aux 6 étapes décrites à la section 6.4.2, on en ajoute une, entre les étapes 3 et 4. Après avoir déterminé la densité d'électrons de la bande de conduction qui tombent dans les pièges déjà présents $\Delta\rho_t$, on utilise

$$\Delta D_t^e = (D_{t,\max} - D_t) \left[1 - \exp\left(-\frac{\beta_t(\rho - \Delta\rho_t)}{D_{t,\max} - D_t}\right) \right]. \quad (6.13)$$

que l'on additionne ensuite à la valeur actuelle de D_t^e . Cette relation est obtenue avec la même méthode que pour l'équation (6.12), à partir du problème analogue des balles et des boîtes. Sauf que cette fois, le nombre de balles est proportionnel à $(\rho - \Delta\rho_t)$, donc à la densité d'électrons de la bande de conduction qui n'est pas tombée dans un piège entre les deux impulsions. On ajoute aussi un nouveau paramètre, la probabilité de création de pièges β_t , qui permet d'ajuster la vitesse à laquelle les pièges extrinsèques sont créés. L'autre nouveau paramètre est la densité de piège maximale $D_{t,\max}$ qui limite leur création. Ce dernier paramètre est difficilement justifiable physiquement et on tentera de s'en débarrasser à la section suivante.

À la figure 6.9 sont présentés les résultats de la simulation d'une interaction avec $N = 35$ impulsions laser. Durant les quelques premières impulsions ($N \lesssim 5$), la création de pièges extrinsèques est pratiquement nulle, car il y a suffisamment de pièges intrinsèques pour accueillir tous les électrons qui peuvent tomber dans un piège. Avec $\rho \sim \Delta\rho_t$, on a alors $\Delta D_t^e \sim 0$ [voir l'équation (6.13)]. Ce n'est que lorsque les pièges intrinsèques commencent à saturer que de nouveaux pièges commencent à être créés. Finalement, la densité de pièges elle-même sature à son tour et la densité de plasma généré à chaque impulsion se stabilise. En bref, on a un comportement semblable à celui sans pièges extrinsèques, mais on a maintenant la possibilité d'étaler le processus sur un plus grand nombre d'impulsions en ajustant le paramètre β_t .

À la figure 6.10, on simule la diminution du seuil de fluence en fonction du nombre d'impulsions, de la même façon qu'à la section précédente, mais en présence de pièges extrinsèques.

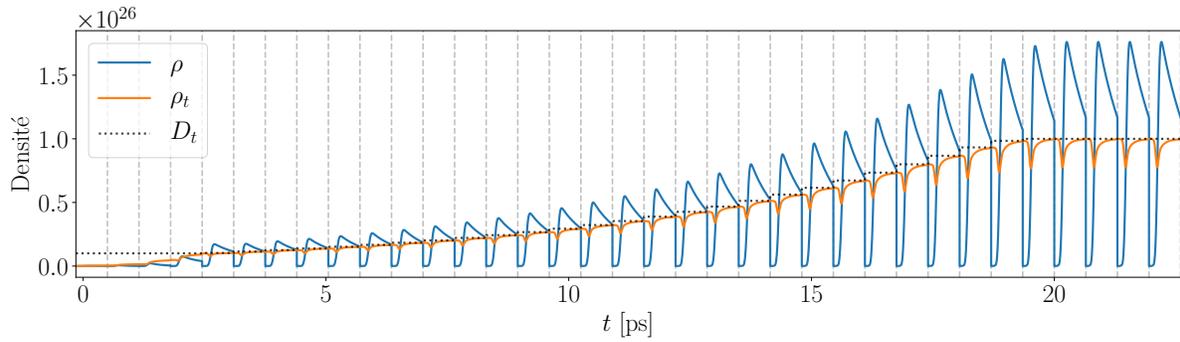


FIGURE 6.9 – Augmentation graduelle de la densité du plasma et d’électron piégés en fonction de la création de pièges extrinsèques durant une interaction avec $N = 35$ impulsions laser. Les paramètres sont $\lambda = 800$ nm, $\tau = 100$ fs, $F = 1.5$ J/cm², $\mathcal{E}_g = 9$ eV, $\mathcal{E}_t = 3$ eV, $D_t^i = 10^{25}$ m⁻³, $\gamma_t = 5$ ps⁻¹, $\gamma_t^i = 0$ ps⁻¹, $\gamma_r = 1$ ps⁻¹, $\beta_t = 0.1$, $D_{t,\max} = 10^{26}$ m⁻³.

PyPlasma 6.3: Pièges extrinsèques

script complet : `pyplasma/examples/capsules/6.3_extrinsic_traps.py`

La figure 6.9 est reproduite de façon similaire à la figure 6.7, sauf qu’entre chaque impulsion laser, on utilise l’équation (6.13) pour calculer la nouvelle densité de pièges extrinsèques pour l’impulsion suivante.

L’incubation du matériau peut maintenant se produire beaucoup plus lentement, en diminuant la valeur de β_t .

On vérifie ensuite comment ces ajouts au modèle modifient la formation et l’auto-organisation du plasma en trois dimensions. En permettant à la densité de pièges occupés ρ_t et à la densité de pièges extrinsèques D_t^e d’être des fonctions de l’espace et en utilisant la méthode FDTD présentée au chapitre 3, on obtient la figure 6.11. La densité de plasma est mesurée immédiatement après le passage de chacune des $N = 9$ impulsions laser, à 100 nm sous la surface rugueuse. La fonction génératrice de la rugosité de surface est celle permettant de produire du bruit fractal, avec une amplitude de $r_a = 20$ nm, 5 octaves et une persistance de 0.5 (voir la section 4.5).

Durant les trois premières impulsions, le plasma s’organise dans un motif parallèle à la polarisation [$\Lambda_{\parallel} \sim \lambda/n$], un comportement de type-d (voir la section 4.3). Durant les trois impulsions laser suivantes (4 à 6, inclusivement), le plasma commence à s’auto-organiser vers un motif perpendiculaire à la polarisation [$\Lambda_{\perp} \sim \lambda/2n$]. Ce comportement est similaire à celui observé à la section 5.3.1, lors d’une simulation avec une seule impulsion laser, suffisamment intense pour atteindre une densité de plasma critique par elle-même. Finalement,

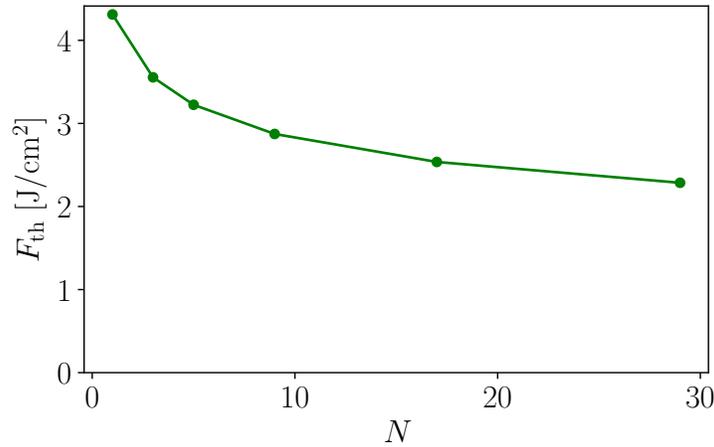


FIGURE 6.10 – Simulation de la diminution de la fluence seuil en fonction du nombre d’impulsions laser due à la présence de pièges intrinsèques et la création de pièges extrinsèques. Les paramètres sont $\lambda = 800$ nm, $\tau = 100$ fs, $\mathcal{E}_g = 9$ eV, $\mathcal{E}_t = 3$ eV, $D_t^i = 10^{24}$ m⁻³, $\gamma_t = 5$ ps⁻¹, $\gamma_t' = 0$ ps⁻¹, $\gamma_r = 1$ ps⁻¹, $\beta_t = 0.02$, $D_{t,max} = 5 \cdot 10^{26}$ m⁻³.

durant les trois dernières impulsions (7 à 9, inclusivement), le motif devient graduellement un peu mieux défini, même si la densité du plasma moyenne s’est stabilisée.

6.5 Ablation laser et croissance de réseaux de surface

On clôt cet ouvrage avec un ultime ajout au modèle, l’ablation de la surface (expulsion ou vaporisation d’une portion de la surface). Ceci va permettre de simuler l’évolution de la forme de la surface d’une impulsion à l’autre et leur auto-organisation. Cette fois, on parle bien de l’auto-organisation des nanostructures dans la forme de la surface elle-même en plus de l’auto-organisation des structures de plasma déjà présentes dans les simulations.

6.5.1 Rétroaction par ablation de la surface

On se rappelle que, de façon générale, l’auto-organisation du plasma est rendue possible en introduisant une boucle de rétroaction entre le plasma et une autre entité (e.g. champ laser, électrons piégés), permettant au plasma d’auto-interagir. Cela a été fait de deux façons jusqu’à maintenant. D’abord, en implémentant à la fois des courants libres (voir le chapitre 1) et des mécanismes d’ionisation (voir le chapitre 2), une boucle de rétroaction intra-impulsion entre le plasma et le champ électromagnétique est alors rendue possible (voir le chapitre 5). Puis, l’implémentation de pièges à électrons dans la bande interdite permet au matériau de conserver une mémoire de la densité de plasma qui est conservée d’une impulsion à l’autre et influence comment le plasma est formé durant les irradiations subséquentes. Ce phénomène

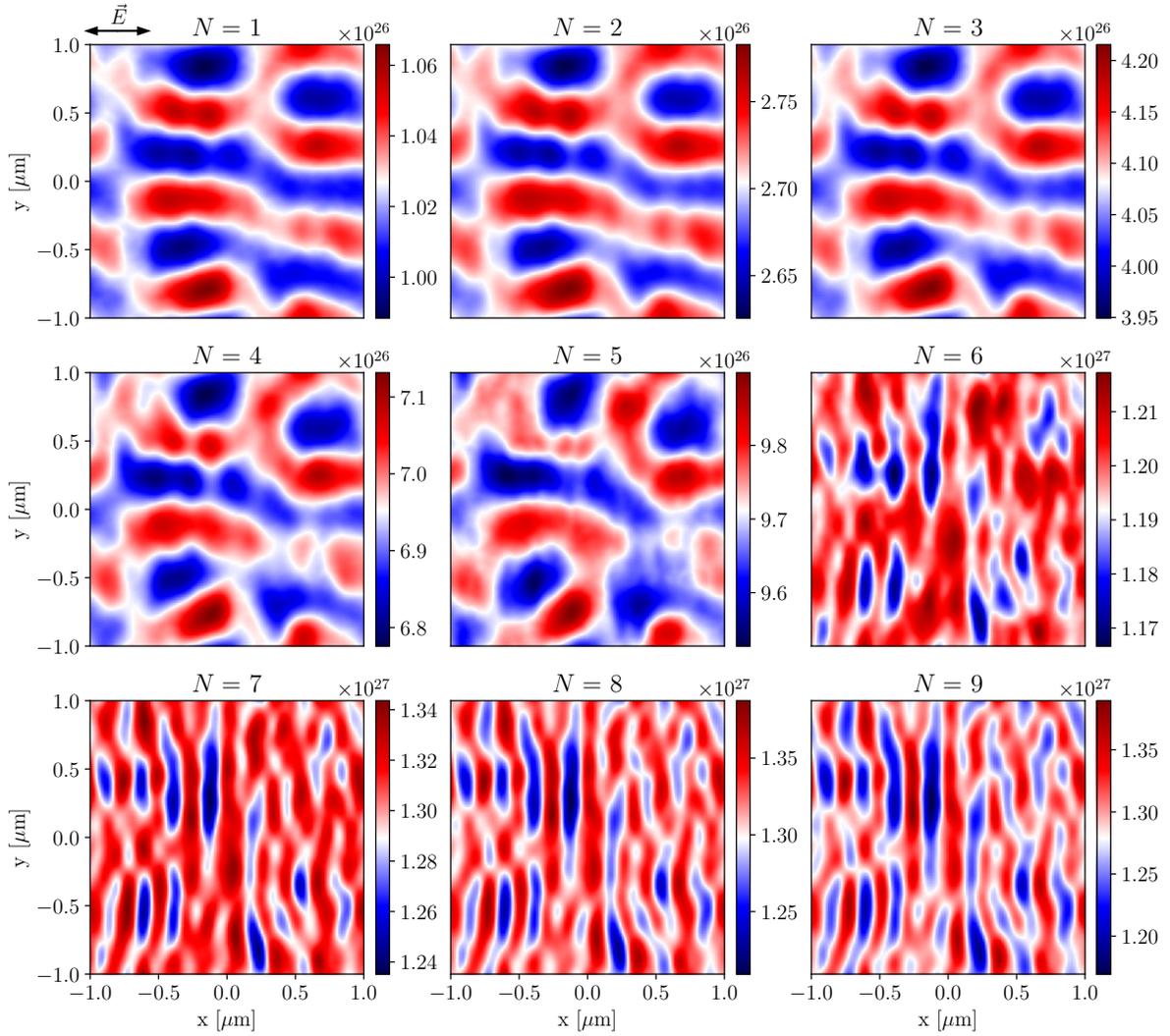


FIGURE 6.11 – Auto-reconfiguration des structures dans la densité du plasma lors d’une interaction multi-impulsionnelle, sous l’influence de l’incubation du matériau. Les paramètres sont $\lambda = 800$ nm, $\tau = 10$ fs, $\mathcal{E}_g = 9$ eV, $\mathcal{E}_t = 3$ eV, $D_t^i = 10^{24}$ m^{-3} , $\gamma_t = 5$ ps $^{-1}$, $\gamma_t' = 0$ ps $^{-1}$, $\gamma_r = 1$ ps $^{-1}$, $\beta_t = 0.02$, $D_{t,\text{max}} = 5 \cdot 10^{26}$ m^{-3} .

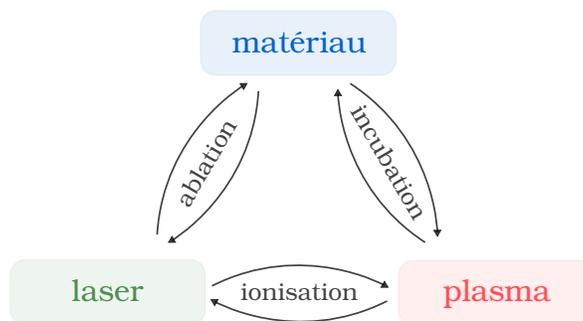


FIGURE 6.12 – Résumé des différentes boucles de rétroaction. Une boucle intra-impulsion prend place entre le laser et le plasma avec les mécanismes d’ionisation. Une boucle inter-impulsion est présente entre le matériau et le plasma quand l’incubation est prise en compte. Finalement, une autre boucle inter-impulsion entre le matériau et le laser est possible avec l’ablation de la surface du matériau.

d’incubation introduit une nouvelle boucle de rétroaction inter-impulsion, cette fois entre le plasma et la structure du matériau.

En résumé, on a présentement une boucle de rétroaction entre le champ électromagnétique et le plasma, puis une boucle entre le plasma et la structure du matériau. Il ne manque plus qu’une boucle entre le champ électromagnétique et la structure du matériau pour compléter... la boucle. Avec un mécanisme d’ablation, l’impulsion laser peut indirectement entraîner une modification de la forme de la surface. À son tour, cette nouvelle surface peut influencer comment l’impulsion laser suivante va interagir avec cette surface, complétant cette ultime boucle de rétroaction inter-impulsion. La figure 6.12 illustre cet ensemble d’interactions complexes.

Ce n’est pas la première fois que l’ablation est implémentée dans des simulations semblables. L’origine de cette idée provient de Skolski *et al.* [91, 89] qui ont introduit une forme rudimentaire d’ablation qu’ils ont qualifiée de non-physique. En absence de mécanismes d’ionisation ou d’incubation, la formation de plasma n’était pas prise en compte pour déterminer comment l’ablation se produisait. Seule l’intensité moyenne leur était accessible, entraînant plusieurs difficultés. En particulier, ils ont dû utiliser un critère d’ablation artificiel pour forcer la profondeur d’ablation désirée. Cette profondeur d’ablation devait alors être un paramètre indépendant de leur modèle, plutôt qu’une conséquence des choix des autres paramètres, comme la fluence du laser par exemple. C’est pourquoi ils ont qualifié leur modèle de non-physique.

Avec le modèle que l’on a maintenant en main, on a l’avantage de pouvoir utiliser un critère d’ablation beaucoup plus près de la réalité, basé sur la densité du plasma. La procédure employée va comme suit. Entre chaque impulsion laser, pour chacune des positions discrètes de la surface (x, y) , on trouve la position de l’intersection $\rho(z) = \rho^*$, où ρ^* est la densité seuil

d’ablation. Puis, la position de la surface est repositionnée à cette intersection.¹ Certes, on ne simule pas l’ablation elle-même (comme dans [35, 68]), par exemple en appliquant un champ de force sur les ions qui les arracherait de la surface. Cela serait probablement superflu pour l’objectif de cette étude.

Au passage, on note que l’on peut se débarrasser d’un paramètre libre introduit à la dernière section, soit la densité de pièges maximale $D_{t,\max}$. Puisque les régions du matériau irradié où la densité du plasma excède un certain seuil sont retirées de la simulation, la densité de piège est ainsi indirectement limitée. On fixe alors ce dernier à la même valeur que la densité du matériau, bien que ce n’est en réalité pas nécessaire.

6.5.2 Taux d’ablation

Avant de se lancer dans les simulations tridimensionnelles, on essaie cette méthode en une seule dimension, le long de l’axe de propagation. À la figure 6.13, on présente trois simulations différentes, chacune avec $N = 10$ impulsions et une valeur différente de fluence F . Dans la colonne de gauche, la fluence est sous le seuil d’ablation à $N = 1$, car la densité du plasma maximale (voir la ligne bleue, à la surface du matériau, soit $z = 500 \mu\text{m}$) est sous la densité seuil d’ablation $\rho^* = 1.5 \cdot 10^{27} \text{ m}^{-3}$ (voir la ligne horizontale pointillée). L’incubation fait ensuite sa part et à $N = 3$, le seuil est atteint et la position de la surface est repositionnée à la valeur de z correspondant à l’intersection $\rho = \rho^*$. Durant les impulsions suivantes, la profondeur d’ablation continue d’augmenter, car l’incubation continue d’amplifier l’absorption du matériau.

Mais cette profondeur d’ablation vient à se stabiliser, car la portion de la surface où la densité de pièges est maximale est continuellement retirée, ce qui expose une partie plus profonde du matériau où l’incubation a été moins importante jusque-là. Un processus similaire est observé pour les fluences plus élevées (voir les deux autres colonnes de la figure 6.13), sauf que la profondeur d’ablation se stabilise à une valeur plus élevée. Cette stabilisation de la profondeur d’ablation est bien ce qui est observé expérimentalement [41].

6.5.3 Évolution de la morphologie de la surface

On présente enfin des résultats de simulations tridimensionnelles. Cette fois, ce n’est pas l’intensité lumineuse moyenne qui est observée, comme au chapitre 4. C’était alors le seul indicateur disponible pour prédire l’allure des réseaux de surface pouvant émerger de l’interaction simulée. Ce n’est pas non plus la distribution de la densité du plasma que l’on présente,

1. Afin d’éviter un effet d’escalier dû à la discrétisation de l’espace, cette position est interpolée et on permet aux cellules computationnelles d’être partiellement remplies de matériau. Les courants sont alors localement pondérés en fonction de cette fraction de remplissage.

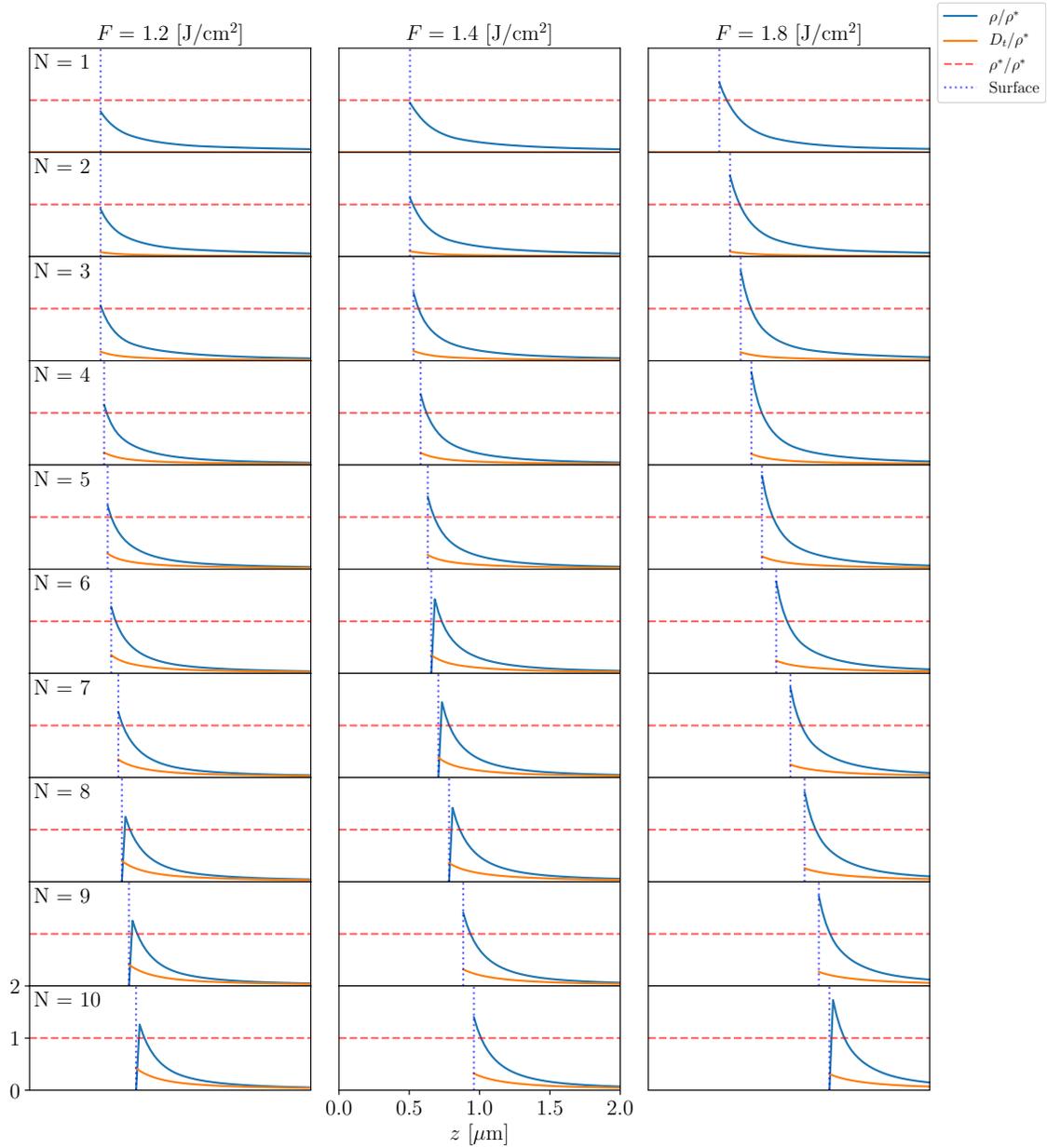


FIGURE 6.13 – Trois simulations unidimensionnelles (une par colonne) de l’ablation d’une surface irradiée par $N = 10$ impulsions laser, avec trois différentes fluences F . Après chaque impulsion, la surface est déplacée à la position correspondante à $\rho = \rho^*$. Les paramètres sont $\lambda = 800$ nm, $\tau = 10$ fs, $\mathcal{E}_g = 9$ eV, $\mathcal{E}_t = 3$ eV, $D_t^i = 10^{25}$ m⁻³, $\gamma_t = 5$ ps⁻¹, $\gamma_t' = 0$ ps⁻¹, $\gamma_r = 1$ ps⁻¹, $\beta_t = 0.1$, $\rho^* = 1.5 \cdot 10^{27}$ m⁻³.

PyPlasma 6.4: Ablation laser

script complet : `pyplasma/examples/capsules/6.4_ablation.py`

Les résultats de la figure 6.13 sont obtenus en ajoutant une nouvelle étape entre les impulsions laser, soit l'ablation de la surface. À la fin d'une simulation, on mesure la profondeur sous la surface pour laquelle $\rho > \rho^*$, puis on modifie en conséquence la position de la surface pour la prochaine impulsion.

comme au chapitre 5. C'est un indicateur plus concret que l'intensité lumineuse, mais toujours une mesure indirecte de ce que l'on veut réellement observer. On a maintenant accès à une prédiction directe de la forme de la surface, après chaque impulsion laser. C'est donc cela qui est présenté dans les prochaines figures.

À la figure 6.14 sont montrées des structures obtenues avec ce modèle. La surface est initialisée avec une fonction génératrice de bruit fractal de $r_a = 30$ nm d'amplitude. Dès la troisième impulsion, on commence à discerner des structures perpendiculaires à la polarisation. Durant les impulsions suivantes, les structures deviennent de plus en plus régulières. La période est d'environ $\Lambda_{\perp} \sim 250$ nm ce qui est très près de $\lambda/2n \sim 276$ nm. On a alors des structures très similaires à ce que prédisaient les résultats du chapitre 5, après l'auto-reconfiguration intra-impulsion du plasma.

Les résultats de la figure 6.14 sont un énorme succès. D'abord, parce que l'on peut voir l'effet de chacune des trois boucles de rétroaction dans une même simulation. L'augmentation graduelle de la quantité de matière retirée à chaque impulsion est due à l'incubation du matériau. Puis les premières structures qui apparaissent sont celles prédites par le modèle de rétroaction intra-impulsion du chapitre 5, qui résultent de l'auto-reconfiguration de plasma vers le motif observé $\Lambda_{\perp} \sim \lambda/2n$. C'est finalement grâce à la troisième boucle de rétroaction, causée par l'ablation de la surface, que l'on peut voir ces structures émerger puis devenir graduellement beaucoup plus régulières que les structures de plasma initiales.

À ce stade, il est difficile de mesurer le potentiel de ce modèle, car seule une étude partielle a pu être faite. Afin de poursuivre ces travaux, une exploration plus conséquente des paramètres du modèle, ainsi qu'une analyse systématique des structures obtenues devraient être faites. Il s'agit d'un travail d'envergure qui dépasse le cadre de cette étude. Avant de conclure, on présente malgré tout une autre forme de réseaux de surface que l'on peut obtenir. La figure 6.15 a été obtenue avec une fluence plus faible et un seuil d'ablation plus bas. La densité du plasma durant l'irradiation est alors moins importante. Les réseaux de surface sont beaucoup moins réguliers et semblent avoir une période approximative de $\Lambda_{\perp} \sim \lambda/n$. Ce motif n'est

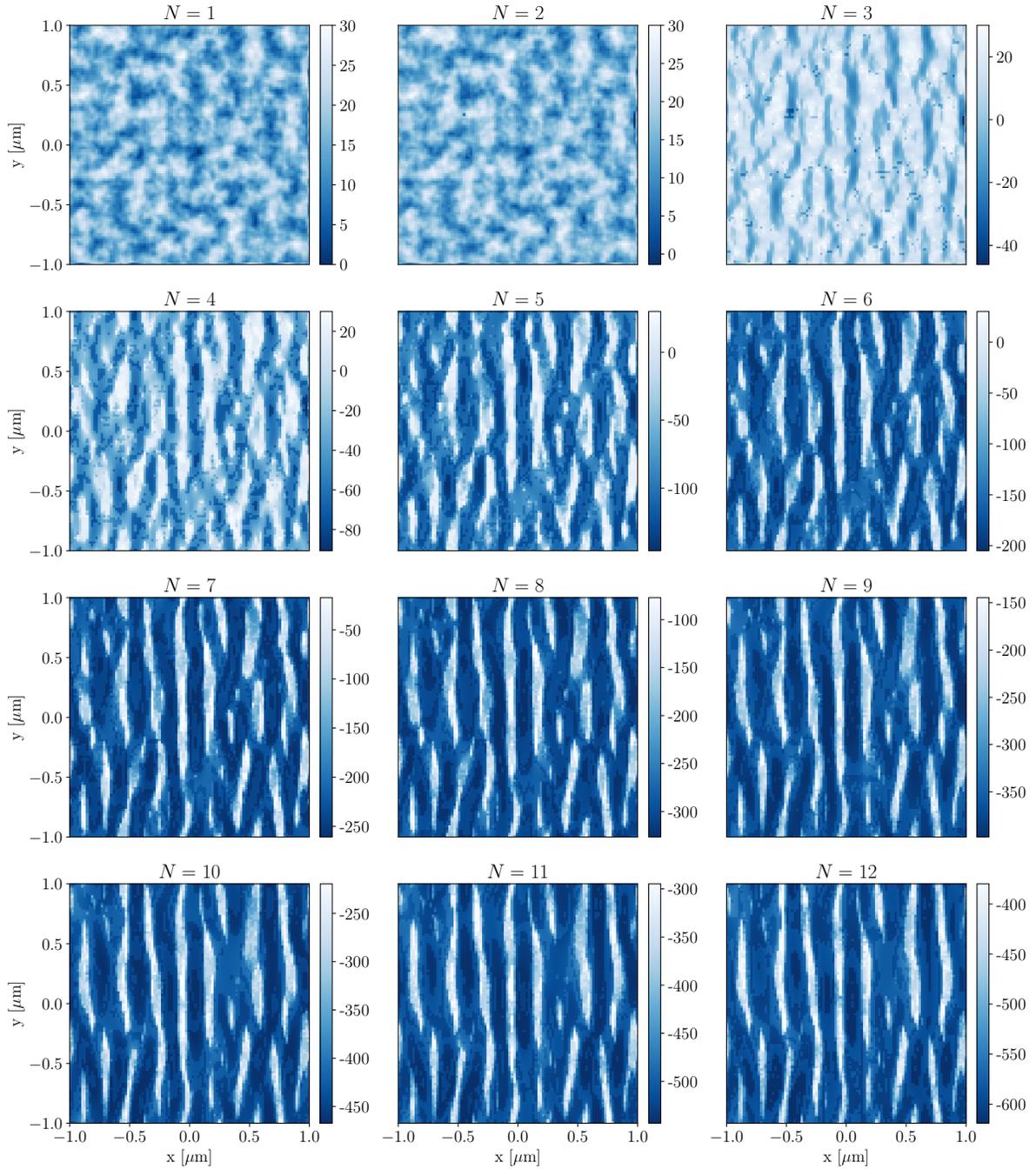


FIGURE 6.14 – Position en nm de la surface d'un matériau irradié par $N = 12$ impulsions laser. Les paramètres sont $\lambda = 800$ nm, $\tau = 10$ fs, $F = 2$ J/cm², $\mathcal{E}_g = 9$ eV, $\mathcal{E}_t = 3$ eV, $D_t^i = 10^{25}$ m⁻³, $\gamma_t = 5$ ps⁻¹, $\gamma_t^i = 0$ ps⁻¹, $\gamma_r = 1$ ps⁻¹, $\beta_t = 0.1$, $\rho^* = 1.5 \cdot 10^{27}$ m⁻³.

encore jamais apparu dans les simulations, malgré leur similitude avec des structures observées expérimentalement sur la silice [82]. Ceci n'est qu'un avant-goût du potentiel de ces simulations.

PyPlasma 6.5: Croissance de nanostructures

script complet : *pyplasma/examples/capsules/6.5_nanostructure_growth.py*

Le script qui reproduit les figures 6.14 et 6.15 est considérablement plus complexe que les autres, mais disponible pour les lecteurs les plus aventureux.

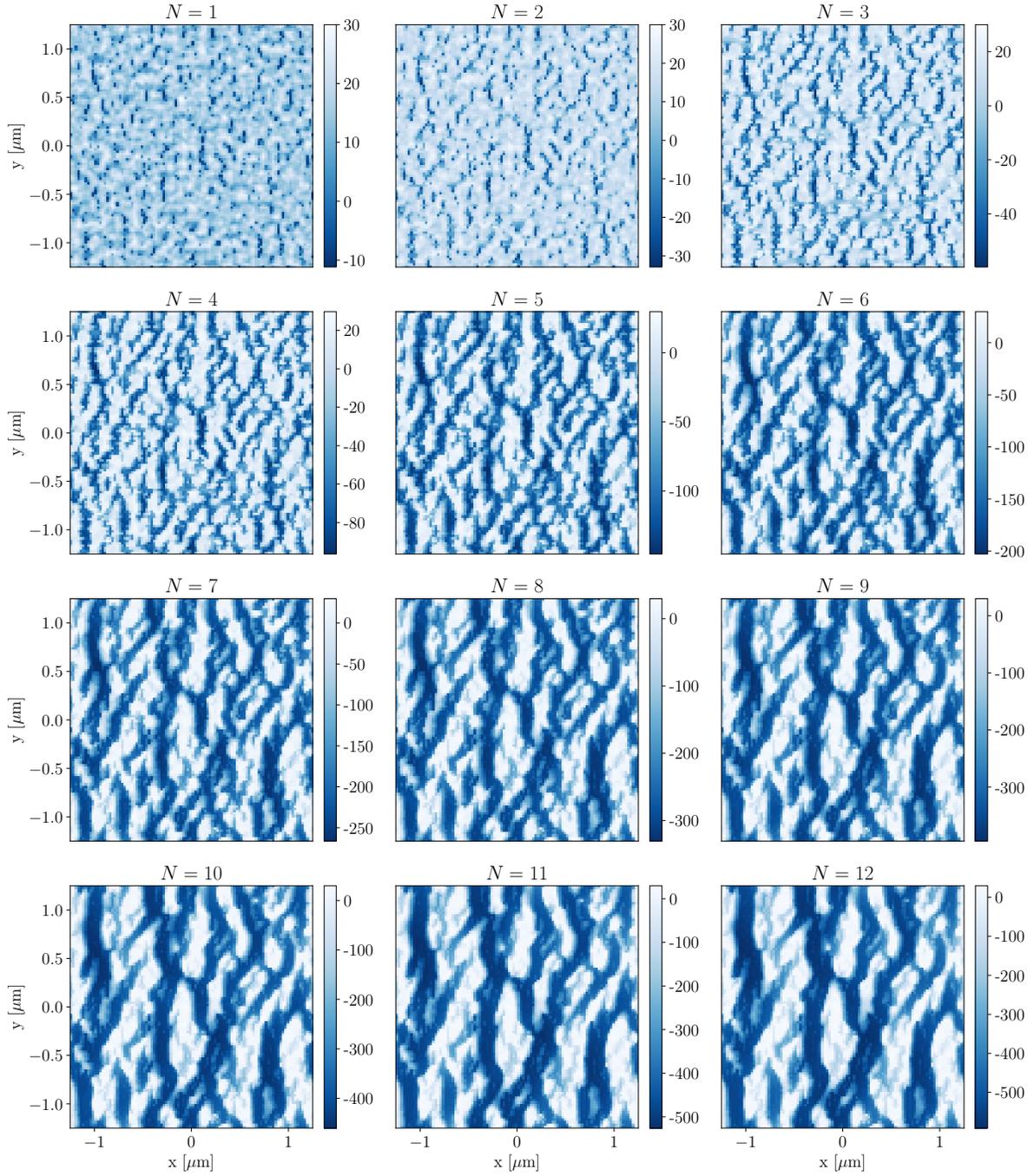


FIGURE 6.15 – Position en nm de la surface d'un matériau irradié par $N = 12$ impulsions laser. Les paramètres sont $\lambda = 800 \text{ nm}$, $\tau = 10 \text{ fs}$, $\mathbf{F} = 1.5 \text{ J/cm}^2$, $\mathcal{E}_g = 9 \text{ eV}$, $\mathcal{E}_t = 3 \text{ eV}$, $D_t^i = 10^{25} \text{ m}^{-3}$, $\gamma_t = 5 \text{ ps}^{-1}$, $\gamma_t' = 0 \text{ ps}^{-1}$, $\gamma_r = 1 \text{ ps}^{-1}$, $\beta_t = 0.1$, $\rho^* = 1.0 \cdot 10^{27} \text{ m}^{-3}$.

Conclusion

Les simulations numériques du processus de formation des réseaux de surface ont pris beaucoup de maturité depuis les premiers pas entrepris par Skolski *et al.* [90]. À cette époque, la théorie analytique de Sipe-Drude [88, 10] était le meilleur outil à la disposition de la communauté des LIPSS afin d'expliquer les motifs des nanostructures observées à la surface des matériaux après les avoir exposés à des impulsions laser intenses. Malgré l'immense succès de cette théorie permettant de prédire correctement et expliquer de nombreuses formes de réseaux de surface [109, 11, 40], elle est loin de pouvoir couvrir entièrement la panoplie de cas d'espèces qui demeurent hors des limites d'applicabilité du modèle [98, 42, 33].

Depuis qu'il a été démontré que la méthode numérique FDTD peut reproduire les résultats de la théorie analytique de Sipe-Drude [90], mais sans les limitations de cette dernière, les choses ont rapidement évolué. Entre autres, une description plus complète du processus de formation des structures de type-r fût possible avec la première implémentation de la rétroaction inter-impulsion [91]. C'est à partir de ce point que l'on a poursuivi ces travaux, d'abord en décrivant pour la première fois les structures de type-m [30], puis avec une extension à cette première forme de rétroaction inter-impulsion [31].

Rapidement, il est devenu évident qu'il manquait un ingrédient central et essentiel au modèle si on souhaitait avancer sur une base plus solide. Jusque-là, le plasma formé durant l'interaction simulée était réduit à une simple paire de paramètres, dont leurs valeurs ne dépendaient ni du temps ou de l'espace. De plus, ces paramètres (densité et amortissement) étaient des paramètres libres, d'aucune façon reliés aux conditions de la simulation. On devrait plutôt s'attendre à ce que la densité de plasma durant la simulation soit une conséquence d'un autre paramètre indépendant tel que l'intensité ou la fluence du laser incident. Toutefois, un tel changement de paradigme ne serait justifié que si on avait une raison de croire que cela pourrait accroître le pouvoir prédictif du modèle de façon significative, quant aux nanostructures obtenues et non seulement la valeur de la densité de plasma. Cette dernière n'est qu'un intermédiaire et non le résultat final que l'on cherche à modéliser.

C'était pourtant le cas et on a démontré que d'implémenter des mécanismes d'ionisation qui

contrôlent le taux de formation du plasma en fonction de l'intensité lumineuse locale peut entraîner une cascade d'événements complexes qui résultent ultimement en une ré-organisation totale des nanostructures périodiques. Il s'agit de la contribution principale des travaux présentés dans cette thèse, présentée au chapitre 5 et publiée dans [27]. Ce que l'on a baptisé la rétroaction intra-impulsion dynamique est venu s'amarrer parfaitement au modèle de l'état de l'art tirant profit de la rétroaction inter-impulsion.

Suivant la publication de ces résultats, de nombreuses questions furent soulevées, pavant la voie pour les prochaines contributions. Si on était alors tenté de passer directement à la combinaison des rétroactions intra- et inter-impulsion, un pas en arrière s'est d'abord imposé afin de valider le choix du modèle d'ionisation. Le modèle *single rate equation* (SRE) [93] utilisé jusque-là ne faisait pas l'unanimité, de par sa simplicité. Les doutes soulevés n'impliquaient que l'importance relative entre les deux mécanismes d'ionisation pris en compte. On a alors montré que les résultats restaient qualitativement inchangés que ce soit l'un ou l'autre qui domine durant la simulation. C'est plutôt un autre aspect de SRE qui a motivé l'implémentation d'un nouveau modèle d'ionisation, soit l'absence de délai entre l'irradiation laser et la formation du plasma. Ce délai, en principe requis afin de déclencher une avalanche d'ionisations, avait le potentiel de diminuer l'importance de la rétroaction intra-impulsion. On devait alors vérifier que le processus d'auto-reconfiguration des nanostructures de plasma décrites précédemment était toujours possible en présence de ce délai.

Le seul modèle alors disponible dans la littérature qui pouvait de façon réaliste être implémenté dans les simulations tri-dimensionnelles et qui présentait un tel décalage temporel entre l'irradiation et l'ionisation était le modèle *multiple rate equations* (MRE) [75]. Mais celui-ci reste très mal adapté à ce genre de calculs, car il est complexe et lourd numériquement. Ce constat a mené au développement d'une alternative, le modèle *delayed rate equations* (DRE) [28], présenté au chapitre 2. Ce nouveau modèle d'ionisation s'est révélé un outil incroyablement pratique, prédisant des taux pratiquement identiques à MRE, malgré sa simplicité comparable à SRE. Finalement, on a pu montrer que même dans les conditions où le délai d'ionisation est le plus important, relativement à la durée de l'interaction, l'auto-reconfiguration des nanostructures de plasma due à la rétroaction intra-impulsion n'était que peu ou pas affectée, validant les résultats obtenus avec SRE.

Armé de ce nouvel outil qu'est DRE, on s'est également penché sur l'épineuse question de l'importance relative entre les deux mécanismes d'ionisation en jeu. Un débat autour de la possibilité de déclencher une avalanche d'ionisations, nourrie par le mécanisme d'ionisation par impact est omniprésent dans la littérature, dès que la formation de plasma induite par des impulsions laser brèves sont impliquées [5]. On a montré que seules les simulations qui permettent une importante avalanche d'ionisations par impact, dominant l'autre mécanisme

d'ionisation (par rayonnement) peuvent reproduire la relation en loi de puissance entre la fluence laser au seuil de dommage du matériau irradié et la durée de l'impulsion laser. Cela n'est peut-être pas suffisant afin de régler définitivement ce débat, mais permet au minimum d'écarter certaines conclusions opposées obtenues en utilisant MRE [77]. Ces dernières conclusions étaient une conséquence directe d'un choix de paramètre arbitraire, soit le taux d'absorption du plasma utilisé dans [75].

Le point culminant de cette thèse est la combinaison des travaux sur la rétroaction intra-impulsion et inter-impulsion faite au chapitre 6. Sans cette convergence des deux modèles de rétroaction, il était toujours incertain si les structures de plasma auto-organisées précédemment prédites pouvaient être celles inscrites finalement dans la forme de la surface après son exposition à une source lumineuse intense. Jusque-là, on devait s'appuyer sur l'hypothèse que les nanostructures périodiques qui émergent après ces interactions étaient intimement reliées aux structures de plasma apparaissant durant l'irradiation.

Un possible obstacle à la validation de cette hypothèse était le phénomène d'incubation que subit un échantillon quand il est irradié par de multiples impulsions laser. Quand la fluence laser est trop faible pour modifier la structure du matériau et permettre la formation de réseaux de surface avec une seule impulsion, il est toujours possible que cela se produise en exposant la même région de la surface à répétition. Ceci indique que le matériau conserve une forme de mémoire des expositions précédentes. On s'est alors demandé si cette mémoire pouvait éventuellement devenir trop importante pour permettre une ré-organisation du plasma durant une interaction avec un train d'impulsions. On a alors implémenté des pièges à électrons aux simulations, qui sont généralement associés au phénomène d'incubation [59, 32]. On a montré que la reconfiguration du plasma était possible lors de la simulation d'une interaction avec de multiples impulsions laser.

On a ensuite ajouté un mécanisme d'ablation laser qui prend place entre chaque impulsion laser et permet à la forme de la surface d'évoluer. La croissance de nanostructures périodiques à la surface initialement désorganisée d'un matériau solide peut alors être simulée. De ces simulations qui incluent pour la première fois de la rétroaction intra- et inter-impulsion, on a enfin pu voir la forme de la surface graduellement prendre la forme des structures de plasma auto-organisées.

Ce modèle est plutôt complexe et présente un fort potentiel que l'on a à peine effleuré. Mais il est temps de passer le flambeau. Afin d'assurer la pérennité de ces travaux, le modèle numérique est entièrement disponible en ligne [29].

Annexe A

Théorie de Sipe

Les équations du modèle analytique de Sipe (voir la section 4.3, ainsi que [88]) sont présentées dans cette annexe. Ce modèle permet de calculer les fonctions d'efficacité η dont les pics dans l'espace de Fourier indiquent une fréquence préférentielle dans la distribution de l'énergie lumineuse sous une surface rugueuse irradiée.

Pour obtenir ces solutions, le plan d'incidence est divisé en trois régions, représentées à la figure A.1. La première, $x < -\ell$, est le vide au-dessus du matériau d'où provient une onde plane incidente. La seconde, $-\ell < x < 0$, est la région de l'interface rugueuse qui contient une certaine quantité de matériau distribuée aléatoirement et cause le bris de symétrie de l'onde plane incidente. La dernière, $x > 0$, contient le volume du matériau.

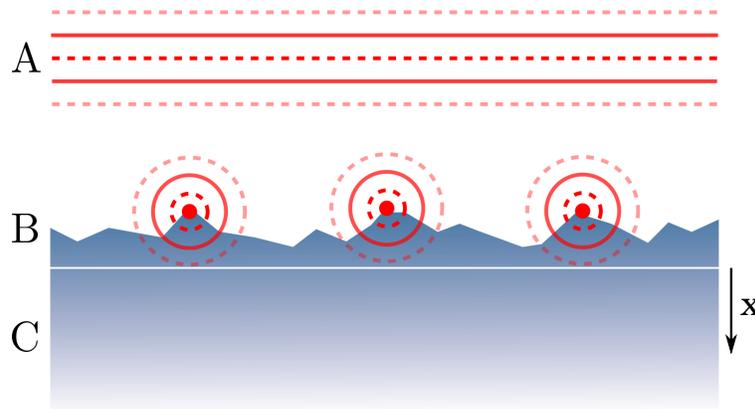


FIGURE A.1 – En A, une onde plane incidente se propage vers la direction $+x$ et frappe une interface rugueuse en B. Des ondes sont diffusées et la symétrie de l'onde plane est brisée. Le volume du matériau est en C.

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

$$I(\vec{k}) \propto \eta(\vec{k}; \vec{k}_i) |b(\vec{k})|, \quad (\text{A.1})$$

où la fonction $\eta(\vec{k}; \vec{k}_i)$ est une fonction de réponse qui décrit l'efficacité de la surface rugueuse à absorber l'onde incidente de vecteur d'onde \vec{k}_i de façon inhomogène avec un vecteur d'onde \vec{k} . On cherche à obtenir des pics de fréquences préférentielles dans cette fonction afin de pouvoir les associer à des types de LIPSS spécifiques. La fonction $b(\vec{k})$ est l'amplitude de la transformée de Fourier de la position de la surface dans la région rugueuse (B) à un vecteur d'onde \vec{k} et devrait donc être pratiquement constante puisque la rugosité de surface doit être aléatoire et sans vecteur d'onde préférentiel.

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

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

où les composantes de \vec{k}_\pm sont définies dans (A.5) et v^* est le complexe conjugué de v , une fonction décrite dans le cas d'une onde incidente de polarisation s par

$$v(\vec{k}_\pm) = \left[h_{ss}(k_\pm) (\hat{k}_\pm \cdot \hat{z})^2 + h_{kk}(k_\pm) (\hat{k}_\pm \cdot \hat{y})^2 \right] g_t |t_s(\vec{k}_i)|^2. \quad (\text{A.3})$$

Dans le cas de polarisation p , cette fonction devient

$$\begin{aligned} v(\vec{k}_\pm) = & \left[h_{ss}(k_\pm) (\hat{k}_\pm \cdot \hat{y})^2 + h_{kk}(k_\pm) (\hat{k}_\pm \cdot \hat{z})^2 \right] g_t |t_y(\vec{k}_i)|^2 \\ & + h_{kx}(k_\pm) (\hat{k}_\pm \cdot \hat{z}) g_x \epsilon t_y^*(\vec{k}_i) t_x(\vec{k}_i) + h_{xk}(k_\pm) (\hat{k}_\pm \cdot \hat{z}) g_t t_y(\vec{k}_i) t_x^*(\vec{k}_i) \\ & + h_{xx}(k_\pm) g_x \epsilon |t_x(\vec{k}_i)|^2. \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

Les produits scalaires sont

$$(\hat{k}_\pm \cdot \hat{z}) = \frac{\sin \theta \pm \kappa_z}{\kappa_\pm} \quad ; \quad (\hat{k}_\pm \cdot \hat{y}) = \frac{\kappa_y}{\kappa_\pm} \quad (\text{A.5})$$

$$\kappa_\pm = \sqrt{\kappa_y^2 + (\sin \theta \pm \kappa_z)^2}, \quad (\text{A.6})$$

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

Les fonctions h sont

$$h_{ss}(\kappa_{\pm}) = \frac{2i}{\sqrt{1 - \kappa_{\pm}^2} + \sqrt{\epsilon - \kappa_{\pm}^2}}, \quad (\text{A.7})$$

$$h_{kk}(\kappa_{\pm}) = \frac{2i\sqrt{(\epsilon - \kappa_{\pm}^2)(1 - \kappa_{\pm}^2)}}{\epsilon\sqrt{1 - \kappa_{\pm}^2} + \sqrt{\epsilon - \kappa_{\pm}^2}}, \quad (\text{A.8})$$

$$h_{kx}(\kappa_{\pm}) = \frac{2i\kappa_{\pm}\sqrt{\epsilon - \kappa_{\pm}^2}}{\epsilon\sqrt{1 - \kappa_{\pm}^2} + \sqrt{\epsilon - \kappa_{\pm}^2}}, \quad (\text{A.9})$$

$$h_{xk}(\kappa_{\pm}) = \frac{2i\kappa_{\pm}\sqrt{1 - \kappa_{\pm}^2}}{\epsilon\sqrt{1 - \kappa_{\pm}^2} + \sqrt{\epsilon - \kappa_{\pm}^2}}, \quad (\text{A.10})$$

$$h_{xx}(\kappa_{\pm}) = \frac{2i\kappa_{\pm}^2}{\epsilon\sqrt{1 - \kappa_{\pm}^2} + \sqrt{\epsilon - \kappa_{\pm}^2}}. \quad (\text{A.11})$$

Les fonctions t sont

$$t_s(\vec{k}_i) = \frac{2|\cos \theta|}{|\cos \theta| + \sqrt{\epsilon - (\sin \theta)^2}}, \quad (\text{A.12})$$

$$t_y(\vec{k}_i) = \frac{2\sqrt{\epsilon - (\sin \theta)^2}}{\epsilon|\cos \theta| + \sqrt{\epsilon - (\sin \theta)^2}}, \quad (\text{A.13})$$

$$t_x(\vec{k}_i) = \frac{2\sin \theta}{\epsilon|\cos \theta| + \sqrt{\epsilon - (\sin \theta)^2}}. \quad (\text{A.14})$$

En utilisant

$$R = \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 1}, \quad (\text{A.15})$$

$$F(s) = \sqrt{s^2 + 1} - s, \quad (\text{A.16})$$

$$G(s) = \frac{\sqrt{s^2 + 4} + s}{2} - \sqrt{s^2 + 1}, \quad (\text{A.17})$$

on peut déterminer les fonctions g

$$g_t = \frac{2(\epsilon - 1)}{4\pi\{2 + (1 - f)(\epsilon - 1)[F(s) - RG(s)]\}}, \quad (\text{A.18})$$

$$g_x = \frac{\epsilon - 1}{4\pi\{\epsilon - (1 - f)(\epsilon - 1)[F(s) + RG(s)]\}}. \quad (\text{A.19})$$

Il reste maintenant quatre paramètres, soient l'angle d'incidence θ , la permittivité du matériau ϵ , le *facteur de remplissage* f (ou *filling factor* dans la publication d'origine) et le *facteur de forme* s (ou *shape factor*). Les deux derniers sont reliés à la forme de la rugosité de surface. Le facteur de remplissage est la fraction de la région de la rugosité de surface qui contient du matériel. Le facteur de forme est le demi-rapport moyen hauteur-sur-largeur des maxima de cette surface. Le couple (f, s) est généralement fixé à $(0.1, 0.4)$, car les solutions dépendent peu de ces deux paramètres et ce couple semble réaliste selon l'étude de Young *et al.* [109].

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

$$v(\vec{k}_{\pm}) = \frac{2i}{\sqrt{1 - \kappa_{\pm}^2} + \sqrt{\epsilon - \kappa_{\pm}^2}} \left(\frac{\kappa_z}{\kappa_{\pm}} \right)^2 + \frac{2i\sqrt{(\epsilon - \kappa_{\pm}^2)(1 - \kappa_{\pm}^2)}}{\epsilon\sqrt{1 - \kappa_{\pm}^2} + \sqrt{\epsilon - \kappa_{\pm}^2}} \left(\frac{\kappa_y}{\kappa_{\pm}} \right)^2 g_t \left| \frac{2}{1 + \sqrt{\epsilon}} \right|^2, \quad (\text{A.20})$$

ainsi que (A.18), ce qui suffit à déterminer la fonction d'efficacité $\eta(\vec{k}; \vec{k}_i)$ avec (A.2). Ayant fixé trois des quatre paramètres, $(f, s) = (0.1, 0.4)$ et $\theta = 0$, il ne reste que les propriétés optiques du matériau, définies par ϵ .

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

$$\ell \ll \frac{\lambda}{2\pi}. \quad (\text{A.21})$$

Ensuite, le domaine de validité des solutions est restreint aux faibles amplitudes du vecteur d'onde,

$$\frac{|\vec{k}|}{|\vec{k}_i|} \ll 1. \quad (\text{A.22})$$

Des exemples de solutions sont présentés à la section 4.3.

Bibliographie

- [1] T. Apostolova, J.M. Perlado, and A. Rivera. Femtosecond laser irradiation induced-high electronic excitation in band gap materials : A quantum-kinetic model based on boltzmann equation. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B*, 352 :167 – 170, 2015.
- [2] N. W. Ashcroft and N. D. Mermin. *Solid State Physics*. Saunders College, Philadelphia, 1976.
- [3] D. Ashkenasi, A. Rosenfeld, H. Varel, M. Wähmer, and E. E. B Campbell. Laser processing of sapphire with picosecond and sub-picosecond pulses. *Appl. Surf. Sci.*, 120(1) :65 – 80, 1997.
- [4] T. Baldacchini, J. E. Carey, M. Zhou, and E. Mazur. Superhydrophobic surfaces prepared by microstructuring of silicon using a femtosecond laser. *Langmuir*, 22 :4917–4919, 2006.
- [5] P. Balling and J. Schou. Femtosecond-laser ablation dynamics of dielectrics : basics and applications for thin films. *Rep. Prog. Phys.*, 76(3) :036502, 2013.
- [6] Y. Bellouard, A. Said, M. Dugan, and P. Bado. Fabrication of high-aspect ratio, microfluidic channels and tunnels using femtosecond laser pulses and chemical etching. *Opt. Express*, 12(10) :2120–2129, 2004.
- [7] V. R. Bhardwaj, E. Simova, P. P. Rajeev, C. Hnatovsky, R. S. Taylor, D. M. Rayner, and P. B. Corkum. Optically produced arrays of planar nanostructures inside fused silica. *Phys. Rev. Lett.*, 96 :057404, 2006.
- [8] M. Birnbaum. Semiconductor surface damage produced by ruby lasers. *J. Appl. Phys.*, 36 :3688–3689, 1965.
- [9] J. Bonse, S. Höhm, S. V. Kirner, A. Rosenfeld, and J. Krüger. Laser-induced periodic surface structures ; a scientific evergreen. *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.*, 23(3) :1–15, 2017.

- [10] J. Bonse, M. Munz, and H. Sturm. Structure formation on the surface of indium phosphide irradiated by femtosecond laser pulses. *J. Appl. Phys.*, 97 :013538, 2005.
- [11] J. Bonse, A. Rosenfeld, and J. Krüger. On the role of surface plasmon polaritons in the formation of laser-induced periodic surface structures upon irradiation of silicon by femtosecond-laser pulses. *J. Appl. Phys.*, 106 :104910, 2009.
- [12] R. W. Boyd. *Nonlinear Optics*. Academic Press, 3rd edition, 2008.
- [13] O. Brenk, N. Brouwer, A. Rämmer, O. Osmani, and B. Rethfeld. Modeling energy transfer and transport in laser-excited dielectrics. In Gregory J. Exarhos, Vitaly E. Gruzdev, Joseph A. Menapace, Detlev Ristau, and M J Soileau, editors, *Laser-Induced Damage in Optical Materials : 2012*, volume 8530, pages 94 – 105. International Society for Optics and Photonics, SPIE, 2012.
- [14] N. Brouwer and B. Rethfeld. Excitation and relaxation dynamics in dielectrics irradiated by an intense ultrashort laser pulse. *J. Opt. Soc. Am. B*, 31(11) :C28–C35, 2014.
- [15] N. Brouwer and B. Rethfeld. Transient electron excitation and nonthermal electron-phonon coupling in dielectrics irradiated by ultrashort laser pulses. *Phys. Rev. B*, 95 :245139, 2017.
- [16] R. Buividas, L. Rosa, R. Šliupas, T. Kudrius, G. Šlekys, V. Datsyuk, and S. Juodkazis. Mechanism of fine ripple formation on surfaces of (semi)transparent materials via a half-wavelength cavity feedback. *Nanotechnology*, 22(5) :055304, 2011.
- [17] N. M. Bulgakova, V. P. Zhukov, and Y. P. Meshcheryakov. Theoretical treatments of ultrashort pulse laser processing of transparent materials : toward understanding the volume nanograting formation and quill writing effect. *Appl. Phys. B*, 113 :437–449, 2013.
- [18] R. Buschlinger, S. Nolte, and U. Peschel. Self-organized pattern formation in laser-induced multiphoton ionization. *Phys. Rev. B*, 89 :184306, 2014.
- [19] R. Böhme and K. Zimmer. The reduction of the threshold fluence at laser-induced backside wet etching due to a liquid-mediated photochemical mechanism. *J. Phys. D Appl. Phys.*, 40(10) :3060–3064, 2007.
- [20] B. Chimier, O. Utéza, N. Sanner, M. Sentis, T. Itina, P. Lassonde, F. Légaré, F. Vidal, and J. C. Kieffer. Damage and ablation thresholds of fused-silica in femtosecond regime. *Phys. Rev. B*, 84 :094104, 2011.

- [21] B. H. Christensen and P. Balling. Modeling ultrashort-pulse laser ablation of dielectric materials. *Phys. Rev. B*, 79 :155424, 2009.
- [22] M. N. Christensen, J. Byskov-Nielsen, B. H. Christensen, and P. Balling. Single-shot ablation of sapphire by ultrashort laser pulses. *Appl. Phys. A*, 101(2) :279–282, 2010.
- [23] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë. *Quantum Mechanics, Volume 1 : Basic Concepts, Tools, and Applications*. Wiley, 2019.
- [24] Y. Dai, A. Patel, J. Song, M. Beresna, and P. G. Kazansky. Void-nanograting transition by ultrashort laser pulse irradiation in silica glass. *Opt. Express*, 24(17) :19344–19353, 2016.
- [25] N. B. Delone and V. P. Krainov. Tunneling and barrier-suppression ionization of atoms and ions in a laser radiation field. *Phys. Uspekhi*, 41(5) :469–485, 1998.
- [26] N. B. Delone and V.P. Krainov. *Multiphoton Processes in Atoms*. Springer, 2nd edition, 2000.
- [27] J.-L. Déziel, L. J. Dubé, S. H. Messaddeq, Y. Messaddeq, and C. Varin. Femtosecond self-reconfiguration of laser-induced plasma patterns in dielectrics. *Phys. Rev. B*, 97(20) :205116, 2018.
- [28] J.-L. Déziel, L. J. Dubé, and C. Varin. Delayed-rate equations model for femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics. *Phys. Rev. B*. En révision.
- [29] J.-L. Déziel, L. J. Dubé, and C. Varin. pyplasma. <https://github.com/jldez/pyplasma>.
- [30] J.-L. Déziel, J. Dumont, D. Gagnon, L. J. Dubé, S. H. Messaddeq, and Y. Messaddeq. Toward the formation of crossed laser-induced periodic surface structures. *J. Opt.*, 17 :075405, 2015.
- [31] J.-L. Déziel, J. Dumont, D. Gagnon, L. J. Dubé, S. H. Messaddeq, and Y. Messaddeq. Constructive feedback for the growth of laser-induced periodic surface structures. *Phys. Status Solidi C*, 13 :121, 2016.
- [32] L. A. Emmert, M. Mero, and W. Rudolph. Modeling the effect of native and laser-induced states on the dielectric breakdown of wide band gap optical materials by multiple subpicosecond laser pulses. *J. Appl. Phys.*, 108(4) :043523, 2010.
- [33] C. Florian, J.-L. Déziel, S. V. Kirner, J. Siegel, and J. Bonse. The role of the laser-induced oxide layer in the formation of laser-induced periodic surface structures. *Nanomaterials*, 10(1) :147, 2020.

- [34] L. Gallais, D.-B. Douti, M. Commandré, G. Batavičiūtė, E. Pupka, M. Ščiuka, L. Smalaky, V. Sirutkaitis, and A. Melninkaitis. Wavelength dependence of femtosecond laser-induced damage threshold of optical materials. *J. Appl. Phys.*, 117(22) :223103, 2015.
- [35] E.G. Gamaly and A.V. Rode. Physics of ultra-short laser interaction with matter : From phonon excitation to ultimate transformations. *Prog. Quantum Electron.*, 37(5) :215 – 323, 2013.
- [36] R. R. Gattass and E. Mazur. Femtosecond laser micromachining in transparent materials. *Nat. Photonics*, 2 :1749–4885, 2008.
- [37] L. Gemini, M. Hashida, M. Shimizu, Y. Miyasaka, S. Inoue, S. Tokita, J. Limpouch, T. Mocek, and S. Sakabe. Metal-like self-organization of periodic nanostructures on silicon and silicon carbide under femtosecond laser pulses. *J. of Appl. Phys.*, 114(19) :194903, 2013.
- [38] S. Guizard, N. Fedorov, A. Mouskeftaras, and S. Klimentov. Femtosecond laser ablation of dielectrics : Experimental studies of fundamental processes. *AIP Conf. Proc.*, 1278(1) :336–346, 2010.
- [39] L. Haahr-Lillevang, K. Wædegaard, D. B. Sandkamm, A. Mouskeftaras, S. Guizard, and P. Balling. Short-pulse laser excitation of quartz : experiments and modelling of transient optical properties and ablation. *Appl. Phys. A*, 120(4) :1221–1227, 2015.
- [40] S. Höhm, A. Rosenfeld, J. Krüger, and J. Bonse. Femtosecond laser-induced periodic surface structures on silica. *J. Appl. Phys.*, 112 :014901, 2012.
- [41] W. Hu, Y. C. Shin, and G. King. Modeling of multi-burst mode pico-second laser ablation for improved material removal rate. *Appl. Phys. A*, 98(2) :407, 2009.
- [42] M. Huang, F. Zhao, Y. Cheng, N. Xu, and Z. Xu. The morphological and optical characteristics of femtosecond laser-induced large-area micro/nanostructures on gaas, si, and brass. *Opt. Express*, 18(S4) :A600–A619, 2010.
- [43] D. Huerta-Murillo, A.I. Aguilar-Morales, S. Alamri, J.T. Cardoso, R. Jagdheesh, A.F. Lagsagni, and J.L. Ocaña. Fabrication of multi-scale periodic surface structures on ti-6al-4v by direct laser writing and direct laser interference patterning for modified wettability applications. *Opt. Lasers Eng.*, 98 :134 – 142, 2017.
- [44] T. Q. Jia, H. X. Chen, M. Huang, F. L. Zhao, X. X. Li, S. Z. Xu, H. Y. Sun, D. H. Feng, C. B. Li, X. F. Wang, R. X. Li, Z. Z. Xu, X. K. He, and H. Kuroda. Ultraviolet-infrared femtosecond laser-induced damage in fused silica and caf_2 crystals. *Phys. Rev. B*, 73 :054105, 2006.

- [45] T. Q. Jia, Z. Z. Xu, R. X. Li, D. H. Feng, X. X. Li, C. F. Cheng, H. Y. Sun, N. S. Xu, and H. Z. Wang. Mechanisms in fs-laser ablation in fused silica. *J. Appl. Phys.*, 95(9) :5166–5171, 2004.
- [46] T. Q. Jia, Z. Z. Xu, X. X. Li, R. X. Li, B. Shuai, and F. L. Zhao. Microscopic mechanisms of ablation and micromachining of dielectrics by using femtosecond lasers. *Appl. Phys. Lett.*, 82(24) :4382–4384, 2003.
- [47] X. Jia and X. Zhao. Numerical investigation of ultrashort laser interaction with dielectric materials based on a plasma-temperature combined model. *J. Manuf. Process.*, 28 :508 – 514, 2017.
- [48] X. Jing, Y. Tian, J. Zhang, S. Chen, Y. Jin, J. Shao, and Z. Fan. Modeling validity of femtosecond laser breakdown in wide bandgap dielectrics. *Appl. Surf. Sci.*, 258(10) :4741 – 4749, 2012.
- [49] S. G. Johnson. *Notes on the UPML implementation in Meep*. 2010. <http://ab-initio.mit.edu/meep/pml-meep.pdf>.
- [50] M. Jupé, L. Jensen, A. Melninkaitis, V. Sirutkaitis, and D. Ristau. Calculations and experimental demonstration of multi-photon absorption governing fs laser-induced damage in titania. *Opt. Express*, 17(15) :12269–12278, 2009.
- [51] A. Kaiser, B. Rethfeld, M. Vicanek, and G. Simon. Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses. *Phys. Rev. B*, 61 :11437–11450, 2000.
- [52] L. V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Sov. Phys.*, 20 :1307, 1965.
- [53] M. Lebugle, N. Sanner, N. Varkentina, M. Sentis, and O. Utéza. Dynamics of femtosecond laser absorption of fused silica in the ablation regime. *J. Appl. Phys.*, 116(6) :063105, 2014.
- [54] M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, Z. Cheng, Ch. Spielmann, G. Mourou, W. Kautek, and F. Krausz. Femtosecond optical breakdown in dielectrics. *Phys. Rev. Lett.*, 80 :4076–4079, 1998.
- [55] R. J. LeVeque. *Finite difference methods for differential equations*. <https://citeseerx.ist.psu.edu/viewdoc/summary?doi=10.1.1.111.1693>, 2006.
- [56] L. M. Machado, R. E. Samad, W. de Rossi, and N. D. V. Junior. D-scan measurement of ablation threshold incubation effects for ultrashort laser pulses. *Opt. Express*, 20(4) :4114–4123, 2012.

- [57] C. R. McDonald, G. Orlando, G. Vampa, and T. Brabec. Tunnel ionization dynamics of bound systems in laser fields : How long does it take for a bound electron to tunnel? *Phys. Rev. Lett.*, 111 :090405, 2013.
- [58] C. R. McDonald, G. Vampa, P. B. Corkum, and T. Brabec. Intense-laser solid state physics : Unraveling the difference between semiconductors and dielectrics. *Phys. Rev. Lett.*, 118 :173601, 2017.
- [59] M. Mero, B. Clapp, J. C. Jasapara, W. Rudolph, D. Ristau, K. Starke, J. Krüger, S. Martin, and W. Kautek. On the damage behavior of dielectric films when illuminated with multiple femtosecond laser pulses. *Opt. Eng.*, 44(5) :051107–051107–7, 2005.
- [60] M. Mero, J. Liu, W. Rudolph, D. Ristau, and K. Starke. Scaling laws of femtosecond laser pulse induced breakdown in oxide films. *Phys. Rev. B*, 71(11) :115109, 2005.
- [61] K. Minoshima, A. M. Kowalevich, I. Hartl, E. P. Ippen, and J. G. Fujimoto. Photonic device fabrication in glass by use of nonlinear materials processing with a femtosecond laser oscillator. *Opt. Lett.*, 26(19) :1516–1518, 2001.
- [62] K. Miura, J. Qiu, S. Fujiwara, S. Sakaguchi, and K. Hirao. Three-dimensional optical memory with rewriteable and ultrahigh density using the valence-state change of samarium ions. *Appl. Phys. Lett.*, 80(13) :2263–2265, 2002.
- [63] C. S. R. Nathala, A. Ajami, W. Husinsky, B. Farooq, S. I. Kudryashov, A. Daskalova, I. Bliznakova, and A. Assion. Ultrashort laser pulse ablation of copper, silicon and gelatin : effect of the pulse duration on the ablation thresholds and the incubation coefficients. *Appl. Phys. A*, 122(2) :1432–0630, 2016.
- [64] P. Nürnberger, H. M. Reinhardt, H.-C. Kim, E. Pfeifer, M. Kroll, S. Müller, F. Yang, and N. A. Hampp. Orthogonally superimposed laser-induced periodic surface structures (lipss) upon nanosecond laser pulse irradiation of sio₂/si layered systems. *Appl. Surf. Sci.*, 425 :682 – 688, 2017.
- [65] E. D. Palik. Chapter 2 - Refractive Index. In *Handbook of Optical Constants of Solids*, pages 5 – 114, Burlington, 1997. Academic Press.
- [66] W. Pauli. Über den zusammenhang des abschlusses der elektronengruppen im atom mit der komplexstruktur der spektren. *Z. Phys.*, 31 :765–783, 1925.
- [67] J. R. Peñano, P. Sprangle, B. Hafizi, W. Manheimer, and A. Zigler. Transmission of intense femtosecond laser pulses into dielectrics. *Phys. Rev. E*, 72 :036412, 2005.

- [68] D. Perez and L. J. Lewis. Molecular-dynamics study of ablation of solids under femto-second laser pulses. *Phys. Rev. B*, 67 :184102, 2003.
- [69] K. Perlin. An image synthesizer. In *Proceedings of the 12th Annual Conference on Computer Graphics and Interactive Techniques*, SIGGRAPH '85, page 287–296, New York, NY, USA, 1985. Association for Computing Machinery.
- [70] G. M. Petrov and J. Davis. Interaction of intense ultra-short laser pulses with dielectrics. *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.*, 41(2) :025601, 2008.
- [71] E.M. Purcell and D.J. Morin. *Electricity and Magnetism*. Electricity and Magnetism. Cambridge University Press, 2013.
- [72] J. Qiu, K. Miura, and K. Hirao. Femtosecond laser-induced microfeatures in glasses and their applications. *J. Non. Cryst. Solids*, 354(12–13) :1100 – 1111, 2008.
- [73] P. P. Rajeev, M. Gertsvolf, P. B. Corkum, and D. M. Rayner. Field Dependent Avalanche Ionization Rates in Dielectrics. *Phys. Rev. Lett.*, 102(8) :083001, 2009.
- [74] P. P. Rajeev *et al.* Transient nanoplasmonics inside dielectrics. *J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys.*, 40 :S273–S282, 2007.
- [75] B. Rethfeld. Unified model for the free-electron avalanche in laser-irradiated dielectrics. *Phys. Rev. Lett.*, 92 :187401, 2004.
- [76] B. Rethfeld. Free-electron generation in laser-irradiated dielectrics. *Phys. Rev. B*, 73 :035101, 2006.
- [77] B. Rethfeld, O. Brenk, N. Medvedev, H. Krutsch, and D. H. H. Hoffmann. Interaction of dielectrics with femtosecond laser pulses : application of kinetic approach and multiple rate equation. *Appl. Phys. A*, 101(1) :19–25, 2010.
- [78] S. Richter, M. Heinrich, S. Döring, A. Tünnermann, S. Nolte, and U. Peschel. Nanogratings in fused silica : Formation, control, and applications. *J. Laser Appl.*, 24(4), 2012.
- [79] A. Rosenfeld, M. Lorenz, R. Stoian, and D. Ashkenasi. Ultrashort-laser-pulse damage threshold of transparent materials and the role of incubation. *Appl. Phys. A*, 69(1) :S373–S376, 1999.
- [80] A. Rudenko, J.-P. Colombier, and T. E. Itina. From random inhomogeneities to periodic nanostructures induced in bulk silica by ultrashort laser. *Phys. Rev. B*, 93 :075427, 2016.

- [81] C. Runge. Ueber die numerische auflösung von differentialgleichungen. *Math. Annalen*, 46 :167–178, 1895.
- [82] Gräf S., Kunz C., Engel S., Derrien T.J., and Müller F.A. Femtosecond laser-induced periodic surface structures on fused silica : The impact of the initial substrate temperature. *Materials*, 11(8) :1340, 2018.
- [83] S. A. Sato, K. Yabana, Y. Shinohara, T. Otobe, K.-M. Lee, and G. F. Bertsch. Time-dependent density functional theory of high-intensity short-pulse laser irradiation on insulators. *Phys. Rev. B*, 92 :205413, 2015.
- [84] J. B. Schneider. Understanding the finite-difference time-domain method. www.eecs.wsu.edu/schneidj/ufdtd, 2010.
- [85] N. S. Shcheblanov and T. E. Itina. Femtosecond laser interactions with dielectric materials : insights of a detailed modeling of electronic excitation and relaxation processes. *Appl. Phys. A*, 110(3) :579–583, 2013.
- [86] N. S. Shcheblanov, E. P. Silaeva, and T. E. Itina. Electronic excitation and relaxation processes in wide band gap dielectric materials in the transition region of the keldysh parameter. *Appl. Surf. Sci.*, 258(23) :9417 – 9420, 2012.
- [87] J. E. Sipe, H. M. van Driel, and J. F. Young. Surface electrodynamics : radiation fields, surface polaritons, and radiation remnants. *Can. J. Phys.*, 63 :104–113, 1985.
- [88] J. E. Sipe, J. F. Young, J. S. Preston, and H. M. van Driel. Laser-induced periodic surface structure. i. Theory. *Phys. Rev. B*, 27 :1141–1154, 1983.
- [89] J. Z. P. Skolski. *Modeling laser-induced periodic surface structures*. Ph.D. thesis, University of Twente, 2014.
- [90] J. Z. P. Skolski, G. R. B. E. Römer, J. V. Obona, V. Ocelik, A. J. Huis in't Veld, and J. Th. M. De Hosson. Laser-induced periodic surface structures : Fingerprints of light localization. *Phys. Rev. B*, 85 :075320, 2012.
- [91] J. Z. P. Skolski, G. R. B. E. Römer, J. Vincenc Obona, and A. J. Huis in't Veld. Modeling laser-induced periodic surface structures : Finite-difference time-domain feedback simulations. *J. Appl. Phys.*, 115 :103102, 2014.
- [92] J. Stark. Observation of the separation of spectral lines by an electric field. *Nature*, 92 :401, 1913.

- [93] B. C. Stuart, M. D. Feit, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, and M. D. Perry. Laser-induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 74 :2248–2251, 1995.
- [94] Q. Sun, F. Liang, R. Vallée, and S. L. Chin. Nanograting formation on the surface of silica glass by scanning focused femtosecond laser pulses. *Opt. Lett.*, 33 :2713–2715, 2008.
- [95] Z. Sun, M. Lenzner, and W. Rudolph. Generic incubation law for laser damage and ablation thresholds. *J. Appl. Phys.*, 117(7) :073102, 2015.
- [96] A. Taflove and S. C. Hagness. *Computational Electrodynamics : The Finite-Difference Time-Domain Method*. Artech House, Incorporated, 2005.
- [97] D. Tan, K. N. Sharafudeen, Y. Yue, and J. Qiu. Femtosecond laser induced phenomena in transparent solid materials : Fundamentals and applications. *Prog. Mater. Sci.*, 76 :154 – 228, 2016.
- [98] R. Taylor, C. Hnatovsky, and E. Simova. Applications of femtosecond laser induced self-organized planar nanocracks inside fused silica glass. *Laser Photon. Rev.*, 2(1-2) :26–46, 2008.
- [99] A.-C. Tien, S. Backus, H. Kapteyn, M. Murnane, and G. Mourou. Short-pulse laser damage in transparent materials as a function of pulse duration. *Phys. Rev. Lett.*, 82 :3883–3886, 1999.
- [100] H. M. van Driel, J. E. Sipe, and J. F. Young. Laser-induced periodic surface structure on solids : a universal phenomenon. *Phys. Rev. Lett.*, 49 :1955–1958, 1982.
- [101] H. Varel, D. Ashkenasi, A. Rosenfeld, R. Herrmann, F. Noack, and E. E. B. Campbell. Laser-induced damage in SiO_2 and CaF_2 with picosecond and femtosecond laser pulses. *Appl. Phys. A*, 62(3) :293–294, 1996.
- [102] C. Varin, G. Bart, R. Emms, and T. Brabec. Saturable Lorentz model for fully explicit three-dimensional modeling of nonlinear optics. *Opt. Express*, 23(3) :2686–2695, 2015.
- [103] C. Varin, R. Emms, G. Bart, T. Fennel, and T. Brabec. Explicit formulation of second and third order optical nonlinearity in the fdtd framework. *Comput. Phys. Commun.*, 222(Supplement C) :70 – 83, 2018.
- [104] A. Vogel, J. Noack, G. Hüttman, and G. Paltauf. Mechanisms of femtosecond laser nanosurgery of cells and tissues. *Appl. Phys. B*, 81(8) :1015–1047, 2005.

- [105] M. Weizman, N. H. Nickel, I. Sieber, and B. Yan. Laser-induced self-organization in silicon-germanium thin films. *J. of Appl. Phys.*, 103(9) :093536, 2008.
- [106] Q. Wu, Y. Ma, R. Fang, Y. Liao, Q. Yu, X. Chen, and K. Wang. Femtosecond laser-induced periodic surface structure on diamond film. *Appl. Phys. Lett.*, 82 :1703–1705, 2003.
- [107] M. Yang, Q. Wu, Z. Chen, B. Zhang, B. Tang, J. Yao, I. Drevensek-Olenik, and J. Xu. Generation and erasure of femtosecond laser-induced periodic surface structures on nanoparticle-covered silicon by a single laser pulse. *Opt. Lett.*, 39 :343–346, 2014.
- [108] K. Yee. Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell's equations in isotropic media. *IEEE Trans. Antennas Propag.*, 14 :302–307, 1966.
- [109] J. F. Young, J. S. Preston, H. M. Van Driel, and J. E. Sipe. Laser-induced periodic surface structure. ii. experiments on Ge, Si, Al, and brass. *Phys. Rev. B*, 27 :1155, 1983.
- [110] J. F. Young, J. E. Sipe, and H. M. van Driel. Regimes of laser-induced periodic surface structure on germanium : radiation remnants and surface plasmons. *Opt. Lett.*, 8 :431–433, 1983.
- [111] G. L. Yudin and M. Y. Ivanov. Nonadiabatic tunnel ionization : Looking inside a laser cycle. *Phys. Rev. A*, 64 :013409, 2001.
- [112] H. Zhang, J.-P. Colombier, C. Li, N. Faure, G. Cheng, and R. Stoian. Coherence in ultrafast laser-induced periodic surface structures. *Phys. Rev. B*, 92 :174109, 2015.
- [113] P. A. Zhokhov and A. M. Zheltikov. Field-cycle-resolved photoionization in solids. *Phys. Rev. Lett.*, 113 :133903, 2014.
- [114] P. A. Zhokhov and A. M. Zheltikov. Optical breakdown of solids by few-cycle laser pulses. *Sci. Rep.*, 8 :1824, 2018.