



# PROPAGATION NON-LINEAIRE DES IMPULSIONS LASER FEMTOSECONDES DANS LA SILICE

Lionel Sudrie

► **To cite this version:**

Lionel Sudrie. PROPAGATION NON-LINEAIRE DES IMPULSIONS LASER FEMTOSECONDES DANS LA SILICE. Optique [physics.optics]. Université Paris XI Orsay, 2002. Français. <tel-01188199>

**HAL Id: tel-01188199**

**<https://hal-ensta.archives-ouvertes.fr/tel-01188199>**

Submitted on 31 Aug 2015

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

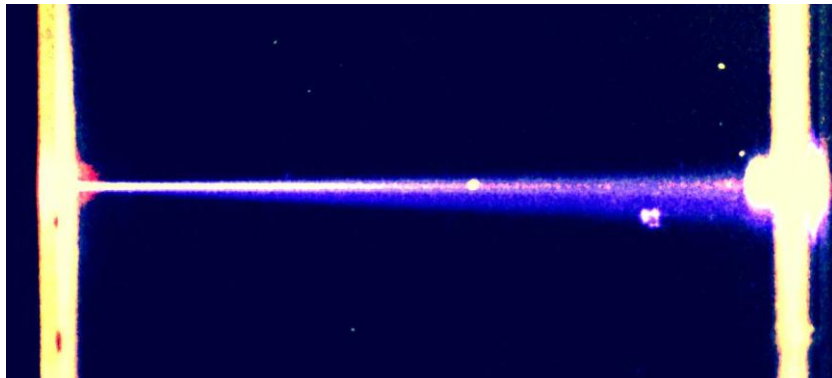
L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# PROPAGATION NON-LINEAIRE DES IMPULSIONS LASER FEMTOSECONDES DANS LA SILICE

par

**Lionel Sudrie**

Thèse présentée pour l'obtention du grade de  
**Docteur en Sciences de l'Université de Paris XI Orsay**  
Spécialité : Optique



Thèse soutenue le 29 mai 2002 devant la commission d'examen composée de :

André Mysyrowicz	Directeur de thèse
Dietrich von der Linde	Rapporteur
Laurent Sarger	Président du jury et rapporteur
Bertrand Pommellec	
Bernard Prade	
Arnaud Couairon	



# *Table des matières*

<i>Introduction</i>	<b>1</b>
<i>Chapitre 1</i>	<b>9</b>
<b><i>INTRODUCTION AUX PRINCIPES DE BASE</i></b>	
1.1. Principes de base de la propagation de la lumière	9
1.1.1. Les équations de propagation d'une onde lumineuse	9
1.1.2. L'effet Kerr optique	12
1.2. L'ionisation en champ intense	17
1.2.1. La transition multiphotonique	17
1.2.2. L'effet tunnel	19
1.2.3. Régime intermédiaire	22
1.2.4. Interactions onde-plasma	23
1.2.5. Filamentation laser	26
1.3. Développement de l'équation d'évolution du champ électrique	27
1.3.1. Cas des impulsions laser	29
1.3.2. Etude du second membre	34
1.3.3. Introduction d'un terme d'absorption photonique	37
1.3.4. Equation finale de l'évolution de l'enveloppe du champ électrique	37
<i>Chapitre 2</i>	<b>43</b>
<b><i>ETUDE DE LA PROPAGATION DES IMPULSIONS DANS UN REGIME DE FAIBLE FOCALISATION</i></b>	
2.1. Expériences de propagation longue distance à faible focalisation sans dommage	44
2.1.1. Le laser	44
2.1.2. Le montage expérimental	44
2.1.3. Résultats expérimentaux	46
2.1.3.1. Première observation de la filamentation dans la silice	
2.1.3.2. Caractérisation spatiale du filament le long de sa propagation	
2.1.3.3. Caractérisation temporelle du filament : autocorrélation de l'impulsion	
2.1.3.4. Spectre du filament	

2.1.3.5. Polarisation du filament	
2.2. Modèle de propagation impulsionnel dans un milieu transparent	52
2.3. Simulations numériques	56
2.3.1. Principes des calculs numériques et validité du code de propagation	56
2.3.2. Conditions initiales des simulations numériques	57
2.3.3. Résultats numériques de la propagation au niveau spatial	58
2.3.4. Résultats numériques de la propagation dans le domaine temporel	60
2.3.5. Résultats numériques de la propagation dans le domaine spectral	62
2.3.6. Intensité lumineuse et densité électronique le long de la propagation	??
2.3.7. Discussion des résultats	64
2.4. Etudes expérimentales complémentaires sur la propagation	66
2.4.1. Filamentation en fonction de la position du foyer et de la puissance laser	66
2.4.2. Changement de milieu de propagation	69

### *Chapitre 3* **77**

#### ***ETUDE DE LA PROPAGATION DES IMPULSIONS DANS UN REGIME DE FORTE FOCALISATION***

3.1. Ensemble expérimental	78
3.2. Autofocalisation par l'effet Kerr optique	81
3.3. Etude de la transmission mono-impulsionnelle	86
3.3.1. Etude expérimentale de la transmission	86
3.3.2. Etude numérique de la transmission	88
3.4. Etude détaillée des résultats numériques et comparaison avec l'expérience	93
3.5. Transmission bi-impulsionnelle	103
3.6. Expériences pompe-sonde en réflexion	112

### *Chapitre 4* **117**

#### ***CARACTERISATIONS DES DOMMAGES***

4.1. Seuils de dommage en régime impulsionnel	117
4.1.1. Comportement pour des impulsions longues	118
4.1.2. Introduction des impulsions courtes	119
4.1.3. Déviation à la loi en $t^{1/2}$	119
4.1.4. Equation d'évolution de la densité électronique	120

4.1.5. Etude de la controverse Du/Stuart	122
4.1.6. Décroissance rapide du plasma	123
4.1.7. Bilan bibliographique sur le claquage optique en impulsions courtes	125
4.1.8. Conséquences des interactions sur les dommages induits	128
4.2. Introduction aux interactions entre les laser femtosecondes et les verres	128
4.2.1. Filamentation et génération de lumière blanche	128
4.2.2. Modifications induites dans les verres par des impulsions ultra-courtes	129
4.3. Expériences d'interaction	133
4.3.1. Montage expérimental	133
4.3.2. Schéma de principe optique au niveau de la zone d'interaction	135
4.3.3. Principe des inscriptions	136
4.4. Caractérisation des inscriptions	140
4.4.1. Microscopie optique en lumière polarisée	141
4.4.2. Comparaison des seuils de dommages avec les courbes de transmission	144
4.4.3. Etude des seuils de dommage en fonction de la focalisation	146
4.4.4. Etude de la biréfringence dans un interféromètre de Michelson	149
4.4.5. Observations en 3D	151
4.4.5.1. Etude de la biréfringence	
4.4.5.2. Microscopie électronique à balayage	
4.4.6. Spectroscopie	156
4.4.7. Interférométrie en lumière blanche	??
4.5. Etudes physiques complémentaires	161
4.5.1. Seuils d'endommagement et effets thermiques	161
4.5.2. Etudes des seuils d'endommagement dans une préforme de fibre optique	163
4.5.3. Etude de l'émission du troisième harmonique	168

## *Chapitre 5* **177**

### ***UTILISATION DES INTERACTIONS LASER/SILICE***

#### ***FABRICATION D'ELEMENTS OPTIQUES***

5.1. Réalisation de réseaux de diffraction en transmission	177
5.1.1. Réseaux de diffraction biréfringents	178
5.1.2. Observation d'un effet de saturation	180
5.1.3. Caractérisation des traits des réseaux par transformée de Fourier inverse	182

5.1.4. Etude de la diffraction en fonction de la longueur d'onde	185
5.1.5. Réseaux de diffraction constitué de traits de type I	190
5.1.6. Stabilité des dommages induits	191
5.2. Guides d'onde	192
<i>Perspectives</i>	<b>197</b>
<i>Conclusion</i>	<b>200</b>

## *Introduction*

L'objet de cette thèse est l'étude de la propagation des impulsions femtosecondes dans les solides transparents. La durée de ces impulsions très courtes est typiquement de l'ordre de quelques  $10^{-15}$  à quelques  $10^{-13}$  s. Elles peuvent fournir de hautes intensités lumineuses pour des énergies modestes. Par exemple, une impulsion de 1  $\mu\text{J}$  et 100 fs focalisée sur une tache de rayon 1  $\mu\text{m}$  impose au milieu une intensité de  $10^{15}$   $\text{W}/\text{cm}^2$ . Lorsqu'elles traversent un milieu transparent, ces fortes intensités laser induisent des non-linéarités importantes qui affectent la propagation de l'impulsion. Ces non-linéarités donnent lieu à des effets spectaculaires. Par exemple, depuis 1995, plusieurs groupes ont étudié la propagation auto-guidée d'impulsions femtosecondes dans l'atmosphère [1-5]. La propagation d'une impulsion intense dans un milieu fait intervenir entre autre deux effets non-linéaires qui jouent deux rôles opposés. L'effet Kerr optique tend à focaliser le faisceau alors que l'ionisation du milieu le défocalise. Schématiquement, on peut dire que si ces deux phénomènes se contrebalancent ils peuvent conduire à une propagation des impulsions laser avec de hautes intensités sur de longues distances. Ce régime de propagation est appelé auto-guidage femtoseconde. Par la suite, j'utiliserai également le terme de "filamentation laser" pour décrire la propagation auto-guidée d'impulsions ultra-courtes dans un milieu transparent.

Au début de mes travaux, la filamentation dans les solides transparents n'avait pas été établie expérimentalement de façon certaine malgré les prévisions théoriques faites par Henz et Herrmann [6]. Seule une courte communication sur l'auto-guidage des impulsions femtosecondes dans du saphir dopé au titane [7] et des indications préliminaires dans la silice [8] sont antérieures à nos travaux.

En focalisant à l'aide d'une lentille de focale 82 mm des impulsions de 1 à 2  $\mu\text{J}$  d'énergie et 160 fs de durée produites par un laser Ti:saphir émettant autour de la longueur d'onde centrale 800 nm, je suis parvenu à former une filamentation laser dans un pavé de silice de 2 cm c'est-à-dire sur une distance 100 fois supérieure à la distance de Rayleigh. L'étude expérimentale de cette propagation non-linéaire nous a permis de réaliser la première caractérisation précise et complète d'un filament dans un milieu solide transparent [9]. Nous avons poussé notre analyse du phénomène en comparant nos résultats expérimentaux à ceux du code numérique de propagation développé par A. Couairon du centre de physique théorique de l'Ecole Polytechnique. Cette étude a donc permis de montrer que la filamentation laser peut avoir lieu dans les milieux solides de la même manière que dans les gaz. Etudier la propagation des impulsions à travers un matériau solide transparent permet d'obtenir les mêmes phénomènes non-linéaires que dans l'atmosphère mais sur des distances beaucoup plus courtes et avec des énergies beaucoup plus faibles. L'étude de la propagation dans les verres représente donc un modèle compact très pratique pour la compréhension des phénomènes physiques responsables de la filamentation. Malgré les hautes intensités laser auxquelles ils ont été soumis, nos échantillons ont été peu ou pas endommagés. Cette constatation est à rapprocher des travaux de D. von der Linde qui a observé une propagation non-linéaire sans dommages en focalisant dans un verre des impulsions de 1 mJ et 120 fs grâce à une lentille de focale 6 cm [10]. Avec de telles conditions, on s'attendrait à un fort endommagement du matériau. Or seuls des centres colorés dus à des absorptions multiphotoniques ont été observés. Par conséquent, la concentration d'énergie optique nécessaire pour induire des dommages n'a pas été atteinte. L'auteur attribue ses observations aux fortes distortions spatiales et temporelles dues aux processus non-linéaires. Dans ce cas, l'explication avancée par D. von der Linde est que la défocalisation du faisceau par le plasma créé reste supérieure à l'autofocalisation par



l'effet Kerr optique. Cet exemple montre combien l'apparition des dégâts en volume est intimement liée à la propagation non-linéaire des impulsions. Cette relation étroite entre propagation et dommages m'a amené à considérer la propagation d'impulsions plus fortement focalisées à l'intérieur de la silice. Ce type de propagation conduit à des densités électroniques très élevées qui induisent des dommages irréversibles. L'étude de ces dégâts apporte un diagnostic efficace par examen post-mortem et par comparaison avec les résultats numériques du code de propagation. De même, le parallèle entre les calculs numériques et les expériences doit permettre de préciser les conditions d'apparition des dommages tout en donnant des grandeurs physiques inaccessibles expérimentalement comme par exemple la densité électronique.

Les performances des lasers de forte puissance sont limitées par la tenue au flux des matériaux. Une meilleure compréhension des mécanismes responsables de l'endommagement des optiques contribuerait donc au développement des installations laser. De plus, les résultats récents sur les applications des interactions non-linéaires des impulsions femtosecondes avec les verres sont très prometteurs. Le nombre de publications dans ce domaine a d'ailleurs fortement augmenté ces deux dernières années. L'intérêt principal porte sur la fabrication d'éléments opto-électroniques intégrés en volume comme des guides d'ondes, des réseaux de diffraction ou des mémoires optiques obtenus grâce aux modifications induites par la focalisation d'impulsions ultra-courtes dans les verres. Il reste cependant de nombreuses zones d'ombre sur les conditions d'apparition des dommages et parfois sur leur nature.

Ce manuscrit de thèse est composé de 5 chapitres.

- **Chapitre 1 :** Après l'introduction des phénomènes physiques présents lors de la propagation non-linéaire des impulsions, l'évolution du champ électrique est décrite par une équation de Schrödinger non-linéaire. Les principaux effets considérés sont la diffraction, l'effet Kerr optique, l'ionisation du milieu et la dispersion de vitesse de groupe. Cette équation de Schrödinger non-linéaire est couplée à une seconde équation décrivant l'évolution de la densité électronique. Ces deux équations ne peuvent être résolues que numériquement. Afin que le code de résolution numérique puisse être valable sur une large gamme d'intensité, il a été nécessaire d'aller au delà de l'approche perturbative pour traiter l'ionisation du milieu. J'introduis les deux cas extrêmes que sont l'ionisation multiphotonique et l'ionisation par effet tunnel. Je donne également la formule générale de Keldysh plus complexe mais qui couvre l'ensemble des conditions des expériences réalisées [11].
  
- **Chapitre 2 :** Cette partie décrit les expériences qui nous ont permis de produire et de caractériser une longue propagation auto-guidée dans les verres. Dans ce cas, l'approche par simple ionisation multiphotonique reste valable. J'ai enregistré le comportement spatial du filament le long de sa propagation. Son diamètre est compris entre 20 et 80 microns sur une propagation de 1 cm. Les spectres des filaments créés ont également été enregistrés et ils montrent un fort élargissement. Il s'agit du phénomène de génération de continuum accompagnant la filamentation dans les solides [12-16] et les gaz [17, 18]. La mesure du signal d'autocorrélation en intensité de l'impulsion permet de remonter à ses caractéristiques temporelles. On observe entre autre une cassure de l'impulsion et sa compression spatiale et

temporelle. Une comparaison détaillée est réalisée entre les résultats expérimentaux et numériques du code de propagation. L'ensemble de ces analyses constitue la première caractérisation d'une filamentation laser dans un verre. Une des conclusions de cette étude expérimentale et numérique est l'aspect négligeable de l'ionisation par avalanche. La conséquence en est le peu de dommages induits dans le matériau traversé en accord avec les constatations de D. von der Linde [10].

- **Chapitre 3 :** En focalisant fortement des impulsions femtosecondes à l'aide d'objectifs de microscope, on obtient un régime conduisant cette fois à un endommagement irréversible du milieu. Ces conditions de forte focalisation correspondent à un second type de propagation auto-guidée. La filamentation dans la silice peut avoir lieu sur quelques dizaines à quelques centaines de microns. Le diamètre de quelques microns de ces filaments est plus étroit que ceux du chapitre 2 (20 à 80  $\mu\text{m}$ ).

Des mesures de transmission permettent de préciser les paramètres à introduire dans le code de propagation, la littérature restant assez floue sur certains coefficients. Des expériences de type pompe-sonde ont confirmé la présence d'un plasma dense et nous ont permis d'observer une absorption de très longue durée que nous attribuons à des effets thermiques.

Les traces de dégâts laissées par les impulsions ont été utilisées comme diagnostics. Elles sont comparées aux résultats numériques et permettent ainsi d'obtenir des informations sur le seuil de densité électronique pour l'apparition des dommages. L'absence de réflexion par le milieu lors de nos expériences pompe-sonde permet de donner une valeur supérieure de la densité d'électrons présents dans le milieu. En effet, une forte réflexion serait mesurée si la densité critique était atteinte. Le parallèle entre les expériences et le code de propagation a donc permis d'avancer

dans la compréhension de la propagation des impulsions très intenses et dans la formation des dégâts. Ces études ont également fait évoluer le code en élargissant son domaine de validité et en précisant certains paramètres.

- **Chapitre 4 :** Les dommages induits par la focalisation en volume des impulsions femtosecondes ont été étudiés en détail. Nous avons observé dans la silice deux types de dommages bien distincts [19]. Le premier qui se forme à faible intensité apparaît comme une simple modification de l'indice du matériau au point de focalisation laser. Ce type de modifications a été signalé dès 1996 [20] et largement utilisé depuis pour la fabrication de guides d'onde [21-26] ou l'inscription d'éléments optiques [27-30]. Nous avons montré pour la première fois qu'un autre type de dommages accompagné d'une forte biréfringence peut être induit dans la silice à plus haute énergie [19, 31]. Le matériau est alors fortement biréfringent, fracturé et légèrement diffusant. Nous attribuons à nouveau ce type de dommage à des effets d'accumulation thermique. Le seuil d'apparition de ce second type de dégâts peut être très proche du premier pour des inscriptions avec un fort taux de répétition. Il peut alors devenir un inconvénient pour la fabrication de guides d'onde.

Des études ont été faites le long de l'axe laser ou dans un plan perpendiculaire par microscopie optique en lumière naturelle ou polarisée pour l'étude détaillée de la biréfringence. La microscopie électronique à balayage a permis de donner avec précision la taille transverse et longitudinale des modifications dans la silice. Les échantillons endommagés ont également été introduits dans un interféromètre de Michelson et des spectres de transmission ont été enregistrés. La connaissance des propriétés des dommages m'a permis d'établir les paramètres expérimentaux pour la fabrication d'éléments optiques présentés au chapitre 5.

- **Chapitre 5 :** J'ai exploité les propriétés des dommages induits pour fabriquer des éléments optiques. J'ai notamment inscrit des réseaux de phase en volume dans la silice [31]. Au delà de l'étude de faisabilité, la mesure des ordres de diffraction permet de caractériser les traits des réseaux et par conséquent donne des renseignements supplémentaires sur les dommages. Ce chapitre se termine par une simple démonstration de lumière guidée dans un guide d'onde également fabriqué par focalisation des impulsions femtosecondes dans la silice.

## Références bibliographiques

- [1] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier and G. Mourou, *Opt. Lett.* 20, p73 (1995).
- [2] E.T.J. Nibbering, P.F. Curley, G. Grillon, B. Prade, M. Franco, F. Salin and A. Mysyrowicz, *Opt. Lett.* 21, p62 (1996).
- [3] A. Brodeur, C.Y. Chien, F.A. Ilkov, S.L. Chin, O.G. Kosareva and V.P. Kandidov, *Opt. Lett.* 22, p304 (1997).
- [4] S. Tzortzakis, B. Lamouroux, A. Chiron, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz and S.D. Moustazis, *Opt. Lett.* 25, p1270 (2000).
- [5] S. Tzortzakis, L. Bergé, A. Couairon, M. Franco, B. Prade and A. Mysyrowicz, *Phys. Rev. Lett.* 86, p5470 (2001).
- [6] S. Henz and J. Herrmann, *Phys. Rev. Lett.* 86, 1003 (2001).
- [7] E. Baubeau, C. Le Blanc, F. Salin, *Conference on Lasers and Electro-Optics*, 407 (1997).
- [8] I.G. Koprnikov, A. Suda, P. Wang, K. Midorikawa, *Phys. Rev. Lett.* 84, p 3847 (2000).
- [9] S. Tzortzakis, L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, A. Couairon and L. Bergé, *Phys. Rev. Lett.* 87, p 213902 (2001).
- [10] D. von der Linde and H. Schüler, *J. Opt. Soc. Am. B* 13, 216 (1996).
- [11] L.V. Keldysh, *Soviet Physics JETP* 20, 1307 (1965).
- [12] R.R. Alfano and S.L. Shapiro, *Phys. Rev. Lett.* 24, 584 (1970).
- [13] P.B. Corkum, P.P. Ho, R.R. Alfano and J.T. Manassah, *Opt. Lett.* 10, 624 (1985).
- [14] A. Brodeur and S.L. Chin, *Phys. Rev. Lett.* 80, 4406 (1998).
- [15] A. Brodeur and S.L. Chin, *J. Opt. Soc. Am. B* 16, 637 (1999).

- [16] P.B. Corkum, C. Rolland and T. Srinivasan-Rao, *Phys. Rev. Lett.* 57, 2268 (1985).
- [17] A.L. Gaeta, *Phys. Rev. Lett.* 84, 3582 (2000).
- [18] V. François, F.A. Ilkov and S.L. Chin *Opt. Comm.* 99, 241 (1993).
- [19] L. Sudrie, M. Franco, B. Prade and A. Mysyrowicz, *Opt. Comm.* 191, 333 (2001).
- [20] K.M. Davis, K. Miura, N. Sugimoto and K. Hirao, *Opt. Lett.* 21, 1729 (1996).
- [21] K. Miura, Jianrong Qiu, H. Inouye, T. Mitsuyu and K. Hirao, *Appl. Phys. Lett.* 71, 3329 (1997).
- [22] K. Miura, H. Inouye, Jianrong Qiu, T. Mitsuyu and K. Hirao, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*141, 726 (1998).
- [23] K. Hirao and K. Miura, *Journal of Non-Crystalline Solids* 239, p91 (1998).
- [24] T. Cardinal, O.M. Efimov, L.B. Glebov, K.C. Richardson, E. Van Stryland, *Conference on Lasers and Electro-Optics, CThL2*, 373 (1998).
- [25] D. Homoelle, S. Wielandy, A.L. Gaeta, N.F. Borrelli and C. Smith, *Opt. Lett.* 24, 1311 (1999).
- [26] C.B. Schaffer, A. Brodeur, J.F. García and E. Mazur, *Opt. Lett.* 26, 93 (2001).
- [27] A. Yu. Naumov, C. Przygodzki, X. Zhu and P.B. Corkum, *Conference on Lasers and Electro-Optics, CThC2*, 356 (1999).
- [28] Y. Kondo, K. Nouchi, T. Mitsuyu, M. Watanabe, P.G. Kasansky and K. Hirao, *Opt. Lett.* 24, 646 (1999).
- [29] T. Toma, Y. Furuya, W. Watanabe, K. Itoh, J. Nishii and K-i Hayashi, *Opt. Rev.* 7, 14 (2000).
- [30] C. Florea, K.A. Winick, Y. Sikorski, A. Said and P. Bado, *Conference on Lasers and Electro-Optics, CMX5*, 128 (2000).

- [31] L. Sudrie, M. Franco, B. Prade and A. Mysyrowicz, *Opt. Comm.* 171, 279 (1999).



# Chapitre 1

## ***INTRODUCTION AUX PRINCIPES DE BASE***

Ce premier chapitre théorique va présenter les principes physiques qui interviendront dans les chapitres suivants basés sur des expériences et des simulations numériques.

La première partie de ce chapitre pose les bases de la propagation des impulsions laser.

La deuxième partie décrit l'ionisation multiphotonique. En conclusion de ce chapitre une équation d'évolution du champ électrique est établie pour des impulsions laser de haute intensité.

### **1.1. Principes de base de la propagation de la lumière**

#### **1.1.1. Les équations de propagation d'une onde lumineuse**

L'état électromagnétique de l'espace est représenté dans la matière par quatre vecteurs  $\vec{E}$ ,  $\vec{D}$ ,  $\vec{H}$  et  $\vec{B}$  où  $\vec{E}$  représente le champ électrique,  $\vec{D}$  le déplacement électrique,  $\vec{H}$  le champ magnétique et  $\vec{B}$  l'induction magnétique [1]. Ces champs sont reliés entre eux par les quatre équations de Maxwell constituant deux groupes [2]:

$$\text{Groupe 1 :} \quad \vec{\nabla} \wedge \vec{E} + \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = \vec{0} \quad (1.1)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0 \quad (1.2)$$

$$\text{Groupe 2 :} \quad \vec{\nabla} \wedge \vec{H} - \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} = \vec{J} \quad (1.3)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D} = \rho \quad (1.4)$$

$\vec{J}$  et  $\rho$ , respectivement appelés le vecteur densité de courant et la densité volumique de charge, représentent les sources de l'onde.

Dans un milieu diélectrique parfait, les seconds membres des équations du groupe 2 disparaissent. De plus, aux fréquences optiques, les relations constitutives décrivant le milieu s'expriment sous la forme [2]:

$$\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \quad (1.5)$$

$$\vec{B} = \mu_0 \vec{H} \quad (1.6)$$

$\varepsilon_0$  est la susceptibilité du vide et  $\mu_0$  la perméabilité magnétique du vide. Ces deux constantes sont liées à la vitesse de la lumière dans le vide  $c$  par :

$$c = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_0 \mu_0}}$$

$\vec{P}(t)$  représente la réponse du milieu à l'excitation électrique  $\vec{E}(t)$ . Si l'on considère que le milieu a une réponse instantanée, ce qui correspond à considérer un milieu non dispersif, on écrit la relation (1.5) sous la forme :

$$\vec{D} = \varepsilon \vec{E} \quad (1.7)$$

$\varepsilon$  est une nouvelle constante appelée permittivité du milieu. Il est également possible d'introduire la permittivité relative du milieu  $\varepsilon_r$  :

$$\varepsilon_r = \frac{\varepsilon}{\varepsilon_0}$$

Nous reviendrons plus en détail sur cette relation (1.5) lorsque nous examinerons la propagation d'une impulsion lumineuse brève. En effet, dans ce cas, il faut tenir compte de la réponse non instantanée du milieu c'est-à-dire des effets dispersifs et modifier en conséquence les relations (1.5) et (1.7).

Les équations (1.1) à (1.4) prennent alors la forme simplifiée :

$$\mu_0 \frac{\partial \vec{\mathcal{H}}}{\partial t} = -\vec{\nabla} \wedge \vec{\mathcal{E}} \quad (1.8)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{\mathcal{H}} = 0 \quad (1.9)$$

$$\varepsilon \frac{\partial \vec{\mathcal{E}}}{\partial t} = \vec{\nabla} \wedge \vec{\mathcal{H}} \quad (1.10)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{\mathcal{E}} = 0 \quad (1.11)$$

Il est commode de regrouper ces équations pour former une équation unique décrivant la propagation du champ électrique  $\vec{\mathcal{E}}(t)$ . Pour cela, on dérive l'équation (1.10) par rapport au temps et on obtient :

$$\varepsilon \frac{\partial^2 \vec{\mathcal{E}}}{\partial t^2} = \vec{\nabla} \wedge \frac{\partial \vec{\mathcal{H}}}{\partial t}$$

On introduit l'équation (1.8) et on trouve:

$$\varepsilon \frac{\partial^2 \vec{\mathcal{E}}}{\partial t^2} = -\frac{1}{\mu_0} \vec{\nabla} \wedge (\vec{\nabla} \wedge \vec{\mathcal{E}})$$

Cette équation peut aussi s'écrire sous la forme :

$$\varepsilon \frac{\partial^2 \vec{\mathcal{E}}}{\partial t^2} = -\frac{1}{\mu_0} (\vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{\mathcal{E}}) - \Delta \vec{\mathcal{E}})$$

On obtient ainsi l'équation des ondes à laquelle obéit le champ électrique.

$$\Delta \vec{\mathcal{E}} - \mu_0 \varepsilon \frac{\partial^2 \vec{\mathcal{E}}}{\partial t^2} = 0 \quad (1.12)$$

Cette équation décrit la propagation du champ électrique dans un milieu d'indice constant dans l'espace et le temps. Les solutions possibles consistent en des ondes se propageant à vitesse constante  $V$  avec :

$$V = \frac{c}{n} = \frac{c}{\sqrt{\varepsilon_r}}$$

d'où 
$$\Delta \vec{\mathcal{E}} - \frac{1}{V^2} \frac{\partial^2 \vec{\mathcal{E}}}{\partial t^2} = 0$$

Remarquons que la propagation d'une onde se fait de manière isotrope et que l'équation (1.12) peut-être remplacée par une équation scalaire sans perte de généralité.

$$\Delta \mathcal{E} - \mu_0 \varepsilon \frac{\partial^2 \mathcal{E}}{\partial t^2} = 0 \quad (1.13)$$

Dans ce travail nous nous intéresserons à des impulsions courtes et intenses. Il sera donc nécessaire d'introduire dans l'équation (1.13) des termes supplémentaires qui tiennent compte de la dispersion et de la réponse non-linéaire du milieu. En toute rigueur, la description scalaire (1.13) n'est plus valable car les termes non-linéaires font intervenir un couplage entre les composantes  $\mathcal{E}_x$ ,  $\mathcal{E}_y$  et  $\mathcal{E}_z$  du champ. Nous négligerons ce couplage et nous resterons dans le cadre du modèle scalaire.

Nous allons maintenant examiner les processus physiques non-linéaires dont le rôle est le plus important pour la propagation d'une impulsion lumineuse intense.

### **1.1.2. L'effet Kerr optique**

La première partie de ce paragraphe va décrire l'indice de réfraction d'un milieu soumis à un flux laser intense. La seconde partie montrera, de façon schématique, le rôle que joue cet indice sur la propagation du faisceau laser.

Dans un milieu à réponse instantanée, la polarisation du milieu peut être développée en puissances croissantes du champ électrique [3]:

$$\mathcal{P}(t) = \varepsilon_0 \left( \chi^{(1)} \mathcal{E}(t) + \chi^{(2)} \mathcal{E}^2(t) + \chi^{(3)} \mathcal{E}^3(t) + \dots \right) \quad (1.14)$$

Précisons que dans cette expression  $\mathcal{E}(t)$  est le champ réel. Si l'on considère une onde quasi-monochromatique de pulsation centrale  $\omega_0$  alors le champ électrique réel s'écrit :

$$\mathcal{E}(r,t) = \frac{1}{2} \left( \mathbf{E}(r,t) e^{-i\omega_0 t} + \bar{\mathbf{E}}(r,t) e^{+i\omega_0 t} \right)$$

Pour les développements qui vont suivre, je vais utiliser la notation complexe du champ suivante :

$$E(r,t) = \mathbf{E}(r,t) e^{-i\omega_0 t}$$

soit 
$$\mathcal{E}(r,t) = \frac{1}{2} (E + \bar{E}).$$

Dans un milieu qui possède un centre d'inversion on montre que les termes comprenant des puissances paires du champ s'annulent [4]. Les milieux qui seront considérés par la suite entrent dans cette catégorie.

Dans le domaine spectral, cette réponse non-linéaire correspond à un terme source qui va rayonner des ondes à de nouvelles fréquences. Nous retenons dans ce qui suit uniquement les composantes à la fréquence  $\omega_0$ . L'expression (1.14) s'écrit alors :

$$P_{\omega_0}(t) = \varepsilon_0 \left( \chi^{(1)} E(t) + \frac{3}{4} \chi^{(3)} |E(t)|^2 E(t) \right) \quad (1.15)$$

Or 
$$D_{\omega_0}(t) = \varepsilon_0 E(t) + P_{\omega_0}(t) = \varepsilon E(t)$$

d'où 
$$P_{\omega_0}(t) = (\varepsilon - \varepsilon_0) E(t) = \varepsilon_0 (\varepsilon_r - 1) E(t) = \varepsilon_0 (n^2 - 1) E(t)$$

et 
$$n^2 - 1 = \chi^{(1)} + \frac{3}{4} \chi^{(3)} |E|^2 \quad (1.16)$$

Examinons la signification de  $|E|^2$ . On obtient la densité de puissance dans le milieu ou intensité  $I$  en calculant la moyenne temporelle du vecteur de Poynting  $\langle Poynt \rangle$ .

$$I = \langle Poynt \rangle = \langle \mathcal{E} \times \mathcal{H} \rangle \quad (1.17)$$

avec 
$$\mathcal{E}(r,t) = \frac{1}{2} (E + \bar{E}), \text{ et } \mathcal{H}(r,t) = \frac{1}{2} (H + \bar{H}).$$

Pour une onde plane on a la relation :

$$H = \sqrt{\frac{\varepsilon}{\mu_0}} E = n_0 \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{\mu_0}} E = n_0 c \varepsilon_0 E$$

car  $\varepsilon_r = \frac{\varepsilon}{\varepsilon_0}$ ,  $c = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_0 \mu_0}}$  et  $n_0 = \sqrt{\varepsilon_r}$

En conclusion (1.17) devient :

$$I = \langle P_{oyn} \rangle = \frac{1}{4} n_0 c \varepsilon_0 \langle (E + \bar{E})^2 \rangle$$

$$I = \langle P_{oyn} \rangle = \frac{1}{4} n_0 c \varepsilon_0 \langle \mathbf{E}^2 e^{-2i\omega_0 t} + \bar{\mathbf{E}}^2 e^{+2i\omega_0 t} + 2|\mathbf{E}|^2 \rangle$$

D'où la forme de l'intensité I dans le milieu :

$$I = \frac{1}{2} n_0 c \varepsilon_0 |\mathbf{E}|^2 = \frac{1}{2} n_0 c \varepsilon_0 |E|^2 \quad (1.18)$$

Cette intensité est souvent exprimée en W/cm<sup>2</sup>.

On peut alors écrire l'indice du milieu sous la forme :

$$n = n_0 + n_2 I$$

On obtient alors les expressions de  $n_0$  l'indice linéaire de réfraction et de  $n_2$  l'indice non-linéaire du milieu :

$$n_0 = \sqrt{1 + \chi^{(1)}}$$

$$n_2 = \frac{3\chi^{(3)}}{4n_0^2 c \varepsilon_0}$$

$n_0$  l'indice linéaire de réfraction est sans dimension alors que  $n_2$  l'indice non-linéaire du milieu s'exprime souvent en cm<sup>2</sup>/W.

Ce changement d'indice de réfraction dû à l'intensité laser est appelé l'effet Kerr optique par analogie à l'effet Kerr électrooptique classique dans lequel l'indice du matériau change de façon proportionnelle au carré du champ statique appliqué.

L'indice non-linéaire affecte la propagation d'un faisceau laser ayant une distribution d'intensité transverse non uniforme. Lorsque  $n_2$  est positif, la dépendance en intensité de l'indice de réfraction peut conduire à l'autofocalisation d'un faisceau lumineux présentant une intensité transverse maximale au centre du faisceau. Les faisceaux laser utilisés dans nos expériences ayant des distributions d'intensité transverses proches de la forme gaussienne, nous serons donc amenés à considérer cet effet d'autofocalisation.

Pour qu'un faisceau laser collimaté s'autofocalise, la courbure positive du front d'onde introduite par l'effet Kerr optique doit être supérieure à la courbure négative due à la diffraction. Cette autofocalisation ne peut avoir lieu que lorsque la puissance du faisceau est supérieure à la puissance critique  $P_{cr}$ . La valeur de la puissance critique peut être obtenue en égalant les deux angles caractéristiques suivants [3] :

$$\theta_d = \frac{0.61\lambda}{n_0 d}$$

$$\theta_0 = \sqrt{\frac{2n_2 I}{n_0}}$$

$\theta_d$  est l'angle de diffraction d'un faisceau de diamètre  $d$  et de longueur d'onde dans le vide  $\lambda$ .

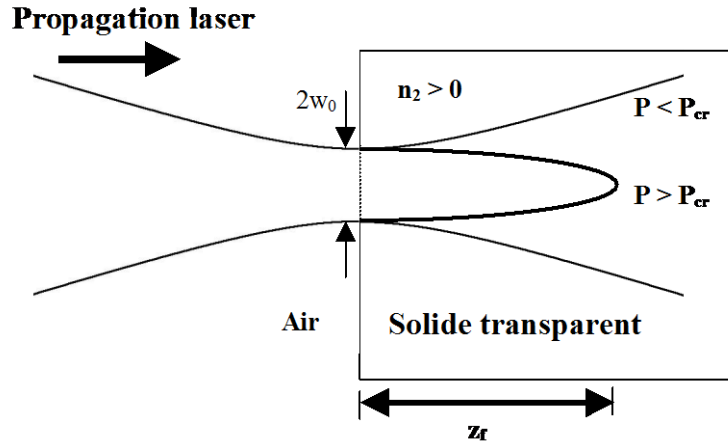
$\theta_0$  est l'angle limite de réflexion totale d'un faisceau qui serait auto-guidé.

En toute rigueur il n'existe pas de faisceau auto-guidé en trois dimensions résultant uniquement de l'équilibre entre la diffraction et l'effet Kerr optique [5]. Cependant il est commode d'utiliser cette hypothèse pour obtenir simplement une expression de la puissance critique.

La puissance critique est alors donnée sous la forme [3] :

$$P_{cr} = \frac{\pi}{4} d^2 I = \frac{\pi(0.61)^2 \lambda^2}{8n_0 n_2}$$

La figure 1.1 montre de façon schématique l'autofocalisation d'un faisceau laser gaussien ayant une puissance  $P$  supérieure à  $P_{cr}$ .



*Figure 1.1 : Représentation schématique de l'autofocalisation du faisceau laser induite par l'effet Kerr optique.*

S'il n'y avait pas de mécanisme de saturation, l'autofocalisation d'un faisceau laser conduirait à sa concentration en un point singulier sur l'axe en  $z = z_f$  où l'intensité deviendrait infinie. Cette distance  $z_f$  est donnée par une formule analytique en supposant une propagation d'une impulsion gaussienne [4, 6] :

$$z_f = z_R \left( \sqrt{\frac{P}{P_{cr}}} - 1 \right)^{-1}$$

avec  $z_R$  la distance de Rayleigh définie par :

$$z_R = \frac{\pi n_0}{\lambda} w_0^2$$

Notons que cette expression devient fautive au point de collapse et qu'une autre expression numérique semi-empirique a été calculée [4, 6]. Cependant j'utiliserai au chapitre 3 l'expression analytique donnée ci-dessus car le raffinement apporté par la formule semi-empirique n'est pas nécessaire pour la comparaison avec nos résultats expérimentaux.



Ce processus d'autofocalisation est d'une grande importance pratique puisqu'il peut conduire à des dommages optiques d'un matériau du fait de l'augmentation de l'intensité au point de focalisation non-linéaire.

Un faisceau laser focalisé par une lentille est également soumis à l'effet Kerr optique. Le faisceau se focalise alors sur une distance de propagation  $z_L$  plus courte que la focale de la lentille. On parle de recul du foyer de focalisation laser. Ce recul  $d_f$  peut être quantifié à partir de la relation des lentilles [6] :

$$\frac{1}{z_L} = \frac{1}{z_f} + \frac{1}{R}$$

$R$  est la focale de la lentille.

Le recul du foyer  $d_f$  s'exprime alors sous la forme :

$$d_f = R - z_L = \frac{R^2}{R + z_f}$$

Cette formule sera adaptée au chapitre 3 afin de décrire certains de nos résultats expérimentaux.

## **1.2. L'ionisation en champ intense**

### **1.2.1. La transition multiphotonique**

Une onde lumineuse qui traverse un milieu solide transparent ne subit pas de perte d'énergie par absorption linéaire car un seul photon n'est pas assez énergétique pour faire passer un électron de la bande de valence vers la bande de conduction. Dans ce

cas :  $\hbar\omega < E_g$

$E_g$  est la différence en énergie entre le sommet de la bande de valence et le minimum de la bande de conduction. Lorsque l'intensité lumineuse croît, la probabilité de transition

d'un électron par absorption simultanée d'un nombre  $K$  de photons augmente.  $K$  est le plus petit nombre entier tel que :

$$K\hbar\omega \geq E_g$$

Le faisceau est atténué et de l'énergie est déposée dans le matériau transparent.

Par exemple, la silice fondue a une bande interdite de 9 eV. Les impulsions qui seront utilisées pour nos études ont une longueur d'onde centrale de 800 nm. Les photons du faisceau laser ont une énergie de :

$$\frac{\hbar\omega}{e} = \frac{hc}{e\lambda} = 1.55 \text{ eV}$$

Il est donc nécessaire que six photons soient absorbés simultanément pour faire passer un électron de la bande de valence à la bande de conduction ( $K=6$ ).

On écrit alors que la densité d'électrons libres  $\rho$  dans la bande de conduction obéit à la relation non-linéaire suivante :

$$\frac{d\rho(t)}{dt} = \sigma_K I(t)^K$$

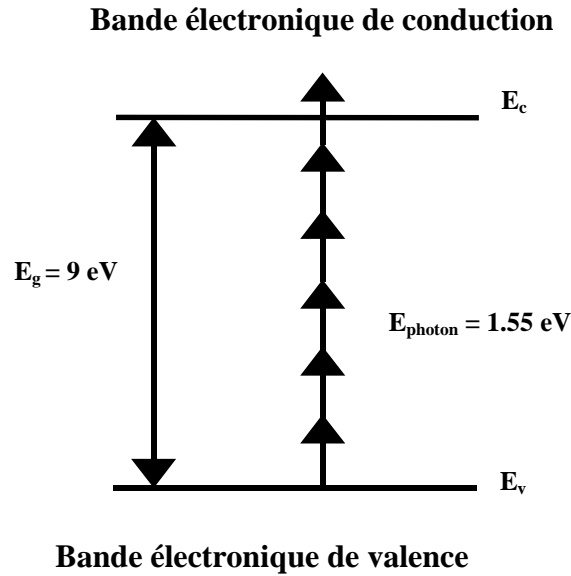
$\sigma_K$  est la section efficace d'absorption multiphotonique.

La figure 1.2 représente de façon schématique l'absorption simultanée de 6 photons par un électron de la bande valence qui est alors promu dans la bande de conduction.

On verra par la suite que la limite de validité de la théorie perturbative est rapidement dépassée. Il est donc nécessaire d'introduire une théorie plus élaborée des transitions multiphotoniques en champ intense.

La relation précédente est généralisée en écrivant :

$$\frac{d\rho(t)}{dt} = w_{MPI}$$



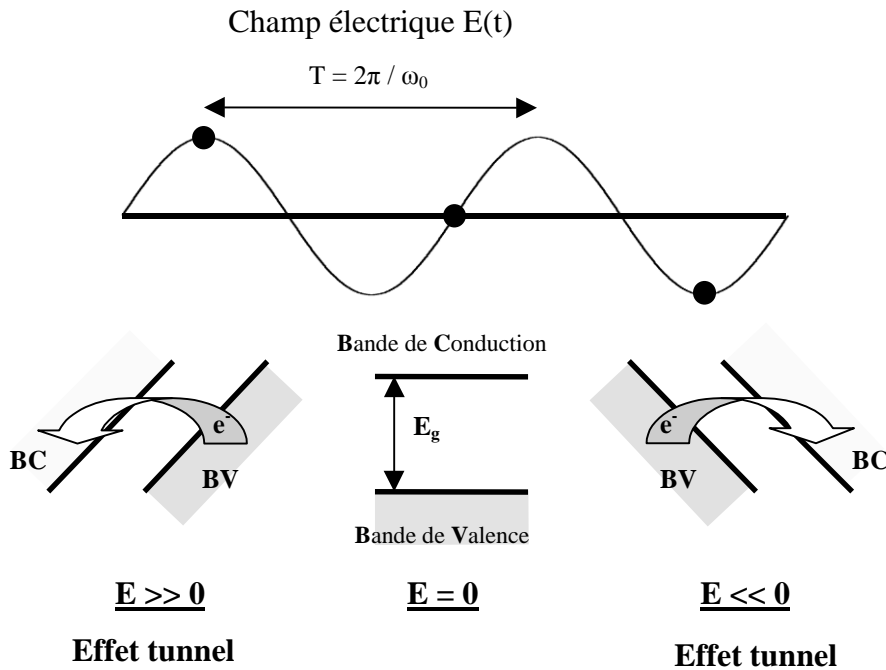
*Figure 1.2 : Représentation schématique du processus de transition d'un électron de la bande de conduction vers la bande de valence par absorption multiphotonique dans un solide.*

L'expression du taux d'ionisation par photoionisation est donnée par la formule (41) de la publication de Keldysh [7]. Cette expression comporte cependant une petite erreur corrigée dans Tien et al. [8] qui étudient les dommages induits par des impulsions courtes sur des matériaux transparents. La courbe est tracée en noir dans la figure 1.4.

### **1.2.2. L'effet tunnel**

L'effet tunnel décrit l'ionisation du milieu par un champ intense lorsque l'approche perturbative décrite précédemment n'est plus valable.

La figure 1.3 décrit de façon très schématique l'effet tunnel dans un solide. Sous l'influence d'un champ électrique externe les bandes de valence et de conduction sont penchées dans la direction du champ. Il existe alors une probabilité que les électrons de la bande de valence franchissent par effet tunnel la bande interdite pour atteindre les états de même énergie dans la bande de conduction.



*Figure 1.3 : Représentation schématique de l'ionisation par effet tunnel dans un solide.*

Cette description de la promotion d'électrons sous l'influence d'un champ électromagnétique est surtout valable lorsque l'énergie d'oscillation  $\hbar\omega$  est faible par rapport à l'énergie  $E_g$ . Précisons le domaine de validité de cette approche.

La vitesse moyenne de l'électron passant à travers la barrière de potentiel par effet tunnel est de l'ordre de  $(E_g/m_e)^{1/2}$ . En utilisant la formule donnant la vitesse moyenne sur un cycle optique  $\langle v^2 \rangle$  on obtient une pulsation limite  $\omega_t$  au dessous de laquelle l'effet tunnel peut être déterminé simplement grâce au champ électrique instantané.

$$\omega_t = \frac{eE}{\sqrt{2m_e E_g}}$$

Pour des fréquences supérieures à  $\omega_t$  la probabilité de photoionisation dépend de la pulsation puisque l'électron n'a pas le temps de traverser la barrière de potentiel en un cycle d'oscillation. Selon la valeur du paramètre d'adiabaticité  $\gamma$  donnée par Keldysh [7] l'ionisation est multiphotonique ou a lieu par effet tunnel.

$$\gamma = \frac{\omega}{\omega_t \sqrt{2}} = \frac{\omega \sqrt{m_e E_g}}{eE} = \sqrt{\frac{E_g}{4V_e}}$$

avec 
$$V_e = \frac{1}{2} m_e \langle v^2 \rangle = \frac{e^2 E^2}{4m_e \omega^2}$$

E est l'amplitude du champ électrique de l'onde lumineuse de pulsation  $\omega$ .

Cette expression est établie en annexe 1 à partir du développement classique de l'accélération de l'électron soumis à un champ électrique. En toute rigueur,  $m_e$  doit être remplacé par la masse effective c'est-à-dire par la masse réduite  $m$  de la paire électron-trou définie par :

$$\frac{1}{m} = \frac{1}{m_e} + \frac{1}{m_t} \quad \text{avec} \quad m_t \text{ la masse du trou.}$$

Pour  $\gamma \gg 1$ , l'ionisation est essentiellement multiphotonique.

Le régime d'ionisation par effet tunnel correspond à  $\gamma \ll 1$ . En d'autres termes, pour des intensités laser élevées c'est-à-dire pour des champs électriques forts tels que  $V_e \gg E_g$ , l'ionisation est mieux décrite par l'effet tunnel. La probabilité qu'a l'électron de passer dans la bande de conduction par effet tunnel est donnée par la formule (40) de Keldysh [7] :

$$w_{\text{tunnel}} = \frac{2}{9\pi^2} \frac{E_g}{\hbar} \left( \frac{mE_g}{\hbar^2} \right)^{3/2} \left( \frac{e\hbar E}{m^{1/2} E_g^{3/2}} \right)^{5/2} \exp \left\{ -\frac{\pi}{2} \frac{m^{1/2} E_g^{3/2}}{e\hbar E} \left( 1 - \frac{1}{8} \frac{m\omega^2 E_g}{e^2 E^2} \right) \right\}$$

Ce régime correspond à la courbe signalée par des carrés pleins sur la figure 1.4. On voit que, contrairement au régime multiphotonique où le taux de transition dépend très fortement de l'intensité laser, dans le cas de l'effet tunnel on tend vers une saturation. De plus, ce taux d'ionisation est indépendant de la pulsation  $\omega$ .

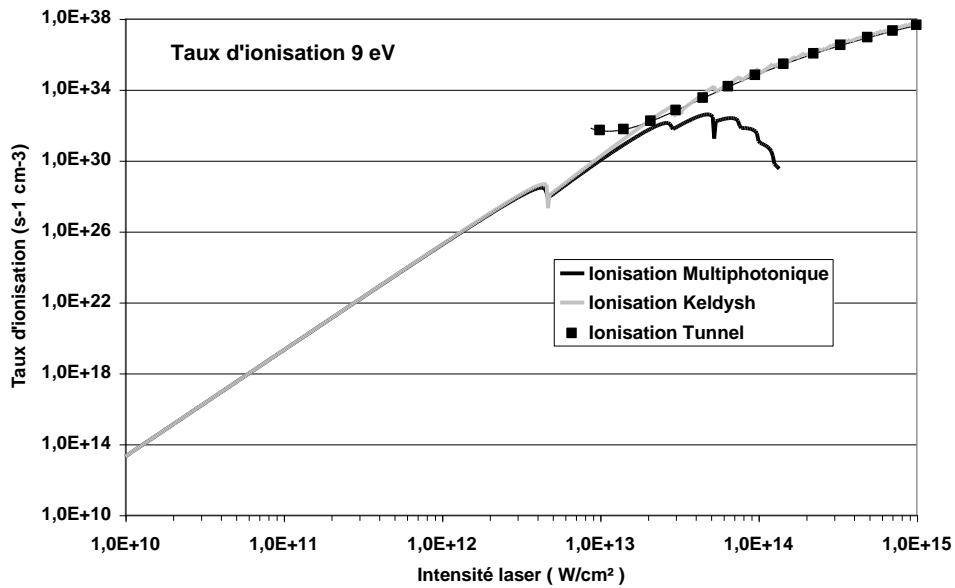
### **1.2.3. Régime intermédiaire**

Les intensités auxquelles seront soumis les milieux solides transparents lors de nos expériences sont comprises entre  $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> et  $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> en fonction de la focalisation, de l'énergie et de la durée des impulsions. Les intensités utilisées se trouvent dans la plage du régime d'ionisation intermédiaire entre l'effet multiphotonique et l'ionisation par effet tunnel. Il est donc nécessaire d'introduire une forme généralisée de la probabilité d'ionisation valable pour toute intensité.

Sur la figure 1.4, la courbe noire tracée à partir de la formule (41) de Keldysh [7] valable dans le régime multiphoton ( $\gamma \gg 1$ ) est asymptotique à la loi en  $(\sigma_K I^K)$  pour les intensités les plus basses. Pour des intensités supérieures à  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>, elle n'est plus utilisable comme le montre la figure 1.4.

La formule (41) d'ionisation par effet tunnel [7] tracée en carrés noirs est valable dès que l'intensité atteint quelques  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>.

La courbe grisée montre l'aspect général du taux d'ionisation en fonction de l'intensité laser. Cette courbe est obtenue à partir des formules (37)-(39) de la publication de Keldysh [7]. Elle rejoint asymptotiquement la courbe noire d'ionisation multiphotonique et lui est confondue jusqu'à quelques  $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>. Elle raccorde les courbes d'ionisation multiphotonique et par effet tunnel.



*Figure 1.4 : Taux d'ionisation à 9 eV calculé à partir des deux formules de Keldysh pour l'ionisation multiphotonique ( $\gamma \gg 1$ ), l'effet tunnel ( $\gamma \ll 1$ ) et à partir de la formule générale valable sur toute la gamme de l'intensité laser.*

#### **1.2.4. Interactions onde-plasma**

Nous venons de voir qu'une onde lumineuse intense transfère des électrons de la bande de valence vers la bande de conduction. La présence d'électrons libres va jouer un rôle important dans la propagation des impulsions laser. Nous allons examiner maintenant les propriétés optiques d'une onde en présence d'un plasma d'électrons libres.

Nous nous plaçons dans le cadre du modèle de Drude en assimilant le plasma à un gaz d'électrons libres non dégénérés. Ce paragraphe va introduire l'indice complexe du plasma. Ses parties réelles et imaginaires décriront le comportement géométrique et l'atténuation d'une onde optique traversant le plasma.

Le champ électrique de l'onde lumineuse et le déplacement des électrons de masse  $m_e$  sous l'effet de ce champ s'expriment sous la forme :

$$\bar{\mathbf{E}}(t) = \frac{1}{2} \left( \mathbf{E}(t) e^{-i\omega_0 t} + \bar{\mathbf{E}}(t) e^{+i\omega_0 t} \right)$$

et

$$\boldsymbol{\chi}(t) = \frac{1}{2} \left( \mathbf{X}(t) e^{-i\omega_0 t} + \bar{\mathbf{X}}(t) e^{+i\omega_0 t} \right)$$

On peut écrire la relation de la mécanique :

$$m_e \frac{d^2 \boldsymbol{\chi}(t)}{dt^2} = -e \bar{\mathbf{E}}(t) - m_e \omega_c \frac{d \boldsymbol{\chi}(t)}{dt}$$

$\omega$  est la pulsation du laser incident,  $\omega_c$  correspond à une fréquence de collision entre les électrons et le réseau dans le cas d'un matériau cristallin. Dans le cas d'un matériau amorphe,  $\omega_c$  représente la fréquence de collision entre les électrons et les atomes neutres.

Pour une onde monochromatique on obtient la solution :

$$\boldsymbol{\chi}(\omega) = \frac{e}{m_e} \frac{\bar{\mathbf{E}}(\omega)}{\omega^2 + i\omega\omega_c}$$

La polarisation du milieu s'exprime sous la forme :

$$\mathcal{P}(\omega) = -\rho e \boldsymbol{\chi}(\omega) = -\frac{\rho e^2}{m_e} \frac{\bar{\mathbf{E}}(\omega)}{\omega^2 + i\omega\omega_c} = \varepsilon_0 \tilde{\chi}_p(\omega) \bar{\mathbf{E}}(\omega)$$

$\tilde{\chi}_p(\omega)$  est la susceptibilité liée au plasma.

Or

$$\mathcal{D}(\omega) = \varepsilon_0 \bar{\mathbf{E}}(\omega) + \mathcal{P}(\omega) = \tilde{\varepsilon}(\omega) \bar{\mathbf{E}}(\omega)$$

d'où

$$\tilde{\chi}_p(\omega) = -\frac{\rho e^2}{m_e \varepsilon_0} \frac{1}{\omega^2 + i\omega\omega_c} = -\frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\omega_c}$$

On appelle  $\omega_p$  la fréquence plasma du gaz d'électrons libres. Elle est fonction de la densité  $\rho$  d'électrons libres. Elle s'exprime sous la forme :

$$\omega_p = \sqrt{\frac{\rho e^2}{\varepsilon_0 m_e}}$$

On extrait de cette susceptibilité l'indice du milieu en présence d'un plasma :

$$\tilde{n}^2(\omega) = \tilde{\varepsilon}_r(\omega) = \frac{\tilde{\varepsilon}(\omega)}{\varepsilon_0} = 1 + \sum \chi = 1 + \chi^{(1)} + \tilde{\chi}_p(\omega) = n_0^2 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\omega_c}$$



$$\tilde{n}^2(\omega) = n_0^2 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \omega_c^2} + i \frac{\omega_p^2 \omega_c}{\omega(\omega^2 + \omega_c^2)}$$

L'indice complexe de réfraction peut donc s'exprimer sous la forme :

$$\tilde{n}(\omega) = n'(\omega) + in''(\omega)$$

Une bonne approximation de la partie réelle de cet indice est obtenue en négligeant les collisions.  $n'(\omega)$  est alors écrit sous la forme:

$$n'(\omega) \approx \sqrt{n_0^2 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}}$$

Pour des densités électroniques modérées, on peut, en première approximation, considérer  $\omega_0$  comme très supérieur à  $\omega_c$  et  $\omega_p$ . On obtient alors l'expression de  $n''(\omega)$  sous une forme simplifiée :

$$n''(\omega) \approx \frac{\omega_c \omega_p^2}{2n_0 \omega(\omega^2 + \omega_c^2)}$$

Examinons l'influence de cet indice de réfraction complexe sur la propagation du faisceau laser. L'intensité laser s'exprime sous la forme :

$$I(z, t) = \frac{1}{2} \tilde{n}(\omega) \varepsilon_0 c \langle \tilde{E}(z, t)^2 \rangle = \frac{1}{2} \tilde{n}(\omega) \varepsilon_0 c \mathbf{E}^2 e^{2ikz}$$

Sachant que le vecteur d'onde  $k$  s'écrit :

$$k = \frac{\omega \tilde{n}(\omega)}{c}$$

L'intensité laser peut s'écrire sous la forme :

$$I(z, t) = \frac{1}{2} \tilde{n}(\omega) \varepsilon_0 c \mathbf{E}^2 e^{2ikz} = \frac{1}{2} \tilde{n}(\omega) \varepsilon_0 c \mathbf{E}^2 e^{2i\frac{\omega}{c} n'z} e^{-2\frac{\omega}{c} n''z}$$

La partie imaginaire de l'indice de réfraction induit donc une absorption du faisceau laser. On obtient le coefficient d'absorption en intensité  $\alpha$  exprimé en  $m^{-1}$  :

$$\alpha = 2 \frac{\omega}{c} n''(\omega) \approx \frac{\omega_c \omega_p^2}{n_0 c (\omega^2 + \omega_c^2)} = \frac{\tau_c \omega_p^2}{n_0 c (1 + \omega^2 \tau^2)}$$

On définit la section efficace d'absorption  $\sigma$  en  $\text{m}^2$  telle que :

$$\sigma = \frac{\alpha}{\rho}$$

La partie réelle de l'indice du milieu peut s'exprimer sous la forme :

$$n'(\omega) = n_0 \sqrt{1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 n_0^2}} = n_0 \sqrt{1 - \frac{1}{n_0^2} \frac{\rho}{\rho_c}}$$

Cette expression fait apparaître la densité critique  $\rho_c$  définie usuellement pour un gaz dont l'indice vaut 1. Elle est de la forme :

$$\rho_c = \omega^2 \frac{\epsilon_0 m_e}{e^2}$$

Si l'on considère nos expériences où les impulsions ont une longueur d'onde centrale de 800 nm alors la densité critique est égale à  $1.74 \cdot 10^{21} \text{ e}^-/\text{cm}^3$ .

L'indice de réfraction devient imaginaire pur pour  $\frac{1}{n_0^2} \frac{\rho}{\rho_c} \geq 1$  c'est-à-dire si  $\rho \geq n_0^2 \rho_c$ .

Alors, pour une densité électronique supérieure à  $(n_0^2 \rho_c)$  l'onde électromagnétique ne peut plus se propager dans le milieu qui a le comportement d'un métal réfléchissant. Si, comme dans la majorité de mes expériences, le milieu de propagation est la silice d'indice  $n_0 = 1.453$  à 800 nm alors la réflexion totale du faisceau sera atteinte pour une densité électronique de  $3.67 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ .

Dans le cas où  $\rho$  est inférieur à  $(n_0^2 \rho_c)$ , l'indice du plasma diminue lorsque la densité électronique donc l'intensité laser augmentent. Le plasma défocalise donc le faisceau laser. Il joue le rôle inverse de l'effet Kerr optique. Le plasma agit comme une lentille divergente.

### **1.2.5. Filamentation laser**

La propagation non-linéaire dans un milieu fait donc intervenir l'effet Kerr optique et l'ionisation du milieu qui jouent deux rôles opposés. De façon simplifiée, on peut dire que si ces deux effets se contrebalancent, ils peuvent conduire à une propagation d'impulsions laser avec de hautes intensités sur de longues distances. Ce régime de propagation est appelé filamentation laser. De nombreuses études ont été menées sur la formation et la caractérisation de ces filaments femtosecondes dans l'air depuis 1995 [9-13]. Cependant, ce régime a été très peu observé et caractérisé dans un solide. Seule une courte communication [14] et une brève mention dans la silice fondue [15] ont été publiées avant notre article qui montre une étude détaillée de la propagation filamentée d'impulsions laser femtosecondes dans la silice [16].

### 1.3. Développement de l'équation d'évolution du champ électrique

Les effets non-linéaires tels que l'effet Kerr optique et la photoionisation viennent d'être décrits de façon indépendante. Tous ces phénomènes vont apparaître en développant l'équation d'Helmholtz (1.13). Les comportements physiques de l'onde et les phénomènes qui en découlent seront présents sous la forme de différents termes dans l'équation de propagation du champ électrique.

Les intensités avec lesquelles nous travaillons provoquent une ionisation du milieu. Nous allons donc être amenés à considérer des diélectriques dans lesquels peuvent exister des courants et pour lesquels la constante diélectrique et donc l'indice de réfraction varie dans l'espace et le temps. Ces effets vont apparaître comme des termes supplémentaires dans l'équation d'Helmholtz.

Les équations de Maxwell sont réutilisées en introduisant cette fois au second membre les sources  $\mathbf{J}$  et  $\mathbf{P}_{NL}$  qui représentent respectivement le vecteur densité de courant et la polarisation non-linéaire du milieu.

L'induction magnétique  $\vec{H}$  est telle que :

$$\vec{\nabla} \wedge \vec{H} - \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} = \vec{J} \quad (1.3)$$

Les relations constitutives décrivant le milieu doivent être modifiées de façon à introduire les effets non-linéaires. Ainsi le déplacement électrique  $\vec{D}$  s'écrit sous la forme :

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P}_L + \vec{P}_{NL}$$

$\vec{P}_L$  et  $\vec{P}_{NL}$  sont les polarisations linéaire et non-linéaire du milieu.

$$\text{On a alors : } \vec{\nabla} \wedge \vec{H} - \epsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} - \frac{\partial \vec{P}_L}{\partial t} = \vec{J} + \frac{\partial \vec{P}_{NL}}{\partial t} \quad (1.19)$$

Comme pour le développement précédent pour un milieu sans charges, la dérivation par rapport au temps de cette équation (1.19), l'introduction de l'équation (1.8) et la relation  $\vec{\nabla} \wedge (\vec{\nabla} \wedge \vec{E}) = \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \Delta \vec{E}$  conduisent à l'équation suivante :

$$\vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \Delta \vec{E} + \mu_0 \varepsilon_0 \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}_L}{\partial t^2} = -\mu_0 \left( \frac{\partial \vec{J}}{\partial t} + \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2} \right) \quad (1.20)$$

Comme indiqué précédemment, les couplages entre les composantes du champ ne sont pas pris en compte. Cela permet de simplifier l'équation en annulant  $\vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E})$ . Cette approximation reste valable tant que le champ électrique reste quasi-transverse.

De même, nous nous plaçons pour les développements à venir dans une approximation scalaire. E représente alors une composante transverse du champ électrique

L'équation (1.20) s'écrit alors sous la forme simplifiée :

$$\Delta E - \mu_0 \left( \varepsilon_0 \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} + \frac{\partial^2 P_L}{\partial t^2} \right) = \mu_0 \left( \frac{\partial J}{\partial t} + \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2} \right) \quad (1.21)$$

Cette équation est constituée d'un membre principal situé à gauche du signe "=" et d'un membre secondaire perturbatif à droite. Cette équation va être traitée en séparant le membre principal  $Q_1(E)$  des termes du membre de droite (J et  $P_{NL}$ ).

### **1.3.1. Cas des impulsions laser**

Une expression détaillée du membre principal  $Q_1(E)$  va être donnée. Pour cela, nous allons expliciter la relation qui lie  $P_L$  à E lorsque l'on tient compte de la dispersion du milieu. En effet, les lasers que nous utilisons sont impulsionnels. Les impulsions

lumineuses ne peuvent être monochromatiques. Elles sont constituées d'un spectre de fréquences. Il existe en effet une relation analogue à une relation d'incertitude entre les largeurs spectrales et temporelles. Elle s'exprime sous la forme :

$$\langle t^2 \rangle \langle \omega^2 \rangle \geq \frac{1}{4\pi^2}$$

avec  $\langle t^2 \rangle$  l'écart quadratique moyen de la durée de l'impulsion tel que

$$\langle t^2 \rangle = \int |E(t)|^2 t^2 dt$$

et 
$$\langle \omega^2 \rangle = \int |F(\omega)|^2 \omega^2 d\omega$$

$F(\omega)$  est le spectre de  $E(t)$ .

Pour une gaussienne, on obtient le produit minimum :

$$\langle t^2 \rangle \langle \omega^2 \rangle = \frac{1}{4\pi^2}$$

On peut traduire cela par le fait que plus la durée d'une impulsion laser est courte plus son spectre est large.

De plus, dans un milieu réel, la susceptibilité diélectrique  $\epsilon$  n'est pas une constante. Elle est fonction de la pulsation  $\omega$  de l'onde. Classiquement, afin de tenir compte de cet effet, on réalise un développement limité de Taylor de  $\epsilon(\omega)$  autour de la fréquence centrale du laser  $\omega_0$ .

On définit  $E(t)$  comme une superposition d'ondes monochromatiques. Ainsi :

$$E(t) = \int \hat{E}(\omega) e^{-i\omega t} d\omega$$

Dans l'espace de Fourier il existe une relation entre le champ électrique  $E(\omega)$  et la polarisation linéaire  $P_L(\omega)$  :

$$\epsilon_0 \hat{E}(\omega) + \hat{P}_L(\omega) = \epsilon(\omega) \hat{E}(\omega)$$

Le membre principal de l'équation (1.18) s'écrit alors dans l'espace de Fourier sous la forme :

$$\hat{Q}_1 \equiv \Delta \hat{E} + \mu_0 \varepsilon(\omega) \omega^2 \hat{E}$$

ou bien :  $\hat{Q}_1 \equiv \Delta \hat{E} + k^2(\omega) \hat{E}$

$k(\omega) = \frac{n(\omega)\omega}{c}$  est le vecteur d'onde et  $n(\omega) = \sqrt{\varepsilon_r(\omega)} = \sqrt{\frac{\varepsilon(\omega)}{\varepsilon_0}}$  l'indice de réfraction.

On peut considérer l'onde comme quasi-monochromatique. Son spectre est positionné autour de la pulsation centrale du laser  $\omega_0$ . Il est alors possible d'écrire :

$$\omega = \omega_0 + \delta\omega \quad \text{avec} \quad \frac{\delta\omega}{\omega_0} \ll 1$$

et  $E(t) = e^{-i\omega_0 t} \int \hat{E}(\omega) e^{-i\delta\omega t} d(\delta\omega) = e^{-i\omega_0 t} \mathbf{E}(t)$

$\mathbf{E}(t)$  représente la partie lentement variable temporellement du champ électrique.

Les sources lasers utilisés dans nos expériences ont des durées d'impulsions comprises entre 50 et 160 fs. Par exemple, un faisceau laser de longueur d'onde centrale 800 nm émettant des impulsions de 100 fs a un spectre de 8 nm. On a bien :

$$\frac{\delta\omega}{\omega_0} = \frac{\delta\lambda}{\lambda_0} = \frac{8}{800} = 0.01 \ll 1$$

L'approximation de l'onde quasi-monochromatique est donc bien valable.

Afin de tenir compte de la propagation dans un milieu dispersif, il est intéressant de développer le vecteur d'onde en série de Taylor autour de  $\omega_0$ . Ce développement sera poussé aux termes du deuxième ordre afin de pouvoir modéliser les déformations temporelles de l'onde au cours de sa propagation dans le milieu dispersif. On écrit :

$$k^2(\omega_0 + \delta\omega) = k^2(\omega_0) + \left[ \frac{d}{d\omega} (k^2(\omega)) \right]_{\omega=\omega_0} \delta\omega + \frac{1}{2!} \left[ \frac{d^2}{d\omega^2} (k^2(\omega)) \right]_{\omega=\omega_0} (\delta\omega)^2$$

Chacun des termes de ce développement de Taylor va être explicité en prenant la notation :

$$k_0 = k(\omega_0) = \frac{n_0 \omega_0}{c}$$

avec  $n_0 = n(\omega_0)$  représentant l'indice de réfraction pour la fréquence  $\omega_0$  de l'onde porteuse.

On obtient :

$$\left[ \frac{d}{d\omega} (k^2(\omega)) \right]_{\omega=\omega_0} = 2k_0 \left[ \frac{dk}{d\omega} \right]_{\omega=\omega_0} = 2 \frac{k_0}{V_g}$$

et

$$\frac{1}{2!} \left[ \frac{d^2}{d\omega^2} (k^2(\omega)) \right]_{\omega=\omega_0} = \left[ \frac{dk}{d\omega} \right]_{\omega=\omega_0}^2 + k_0 \left[ \frac{d^2 k}{d\omega^2} \right]_{\omega=\omega_0} = \frac{1}{V_g^2} + k_0 k_0''$$

$V_g = \left[ \frac{d\omega}{dk} \right]_{\omega=\omega_0}$  représente la vitesse de groupe du paquet d'onde à la fréquence de la porteuse.

$k_0''$  est lié à la variation de la vitesse de groupe  $V_g$  en fonction de la pulsation.

On obtient alors le terme principal de l'équation dans l'espace de Fourier sous la forme :

$$\begin{aligned} \hat{Q}_1 \equiv \Delta \hat{E}(\omega) + k^2(\omega) \hat{E}(\omega) &= e^{-i\omega_0 t} \left[ \Delta \int \hat{E}(\omega) e^{-i\delta\omega t} d(\delta\omega) \right. \\ &+ k_0^2 \int \hat{E}(\omega) e^{-i\delta\omega t} d(\delta\omega) \\ &+ 2 \frac{k_0}{V_g} \int \hat{E}(\omega) e^{-i\delta\omega t} (\delta\omega) d(\delta\omega) \\ &\left. + \left( \frac{1}{V_g^2} + k_0 k_0'' \right) \int \hat{E}(\omega) e^{-i\delta\omega t} (\delta\omega)^2 d(\delta\omega) \right] \end{aligned}$$



Cela donne, dans l'espace des temps, pour le terme principal de l'équation d'évolution du champ électrique :

$$Q_1 \equiv \Delta E - \mu_0 \left( \varepsilon_0 \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} + \frac{\partial^2 P_L}{\partial t^2} \right) = e^{-i\omega_0 t} \left[ \Delta \mathbf{E}(t) + k_0^2 \mathbf{E}(t) + 2 \frac{k_0}{V_g} i \frac{\partial \mathbf{E}(t)}{\partial t} - \left( \frac{1}{V_g^2} + k_0 k_0'' \right) \frac{\partial^2 \mathbf{E}(t)}{\partial t^2} \right]$$

Les situations physiques que nous voulons modéliser correspondent en pratique à des rapports entre le diamètre du faisceau et la longueur de propagation qui sont petits. Dans ce cas il est possible d'utiliser une approximation qui consiste à représenter notre faisceau par des ondes quasi-planes. Pour cela, on procède à une factorisation du terme rapidement variable en  $z$  en écrivant :

$$\mathbf{E}(x, y, z, t) = \xi(x, y, z, t) e^{ik_0 z}$$

On voit alors apparaître  $\xi(x, y, z, t)$  qui représente l'enveloppe lentement variable dans l'espace et le temps du champ électrique. Ainsi :

$$Q_1 \equiv e^{-i(\omega_0 t - k_0 z)} \left[ \Delta_T \xi + \frac{\partial^2 \xi}{\partial z^2} + 2ik_0 \left( \frac{\partial \xi}{\partial z} + \frac{1}{V_g} \frac{\partial \xi}{\partial t} \right) - \left( \frac{1}{V_g^2} + k_0 k_0'' \right) \frac{\partial^2 \xi(t)}{\partial t^2} \right]$$

$\Delta_T \xi$  est le laplacien transverse de l'enveloppe du champ électrique.

Il est commode de suivre l'évolution de l'impulsion en se plaçant dans son référentiel.

Pour cela, on effectue le changement de coordonnées suivant :

$$\tau = t - \frac{z}{V_g}$$

$$z = Z$$

$\tau$  représente le temps retardé

On écrit alors :

$$Q_1 \equiv \left[ \Delta_T \xi + \frac{\partial^2 \xi}{\partial Z^2} + 2ik_0 \frac{\partial}{\partial Z} \left( 1 + \frac{i}{k_0 V_g} \frac{\partial}{\partial \tau} \right) \xi - k_0 k_0'' \frac{\partial^2 \xi}{\partial \tau^2} \right] e^{-i(\omega_0 t - k_0 z)}$$

Afin de pouvoir résoudre l'équation de propagation du champ électrique, les approximations scalaire et d'enveloppe lentement variable par rapport à la fréquence laser sont utilisées.

Ces approximations permettent d'écrire l'inégalité :

$$\frac{\partial^2 \xi}{\partial Z^2} \ll 2k_0 \frac{\partial \xi}{\partial Z}$$

Cette approximation permet d'obtenir une équation aux dérivées partielles de nature parabolique dont la solution est uniquement fonction des conditions initiales. Cette équation se prête aisément à une programmation numérique. Elle s'écrit alors :

$$Q_1 \equiv \left[ \Delta_T \xi + 2ik_0 \frac{\partial}{\partial Z} \left( 1 + \frac{i}{k_0 V_g} \frac{\partial}{\partial \tau} \right) \xi - k_0 k_0'' \frac{\partial^2 \xi}{\partial \tau^2} \right] e^{-i(\omega_0 t - k_0 z)}$$

Le terme principal de l'équation d'évolution du champ électrique vient donc d'être établi en utilisant les approximations adéquates. Il reste à expliciter les termes relatifs à  $J$  et  $P_{NL}$  afin d'obtenir une équation faisant apparaître des dérivées partielles uniquement sur le champ électrique.

### 1.3.2. Etude du second membre

Le second membre de l'équation est traité en perturbation. On ne prendra alors en compte que le champ électrique à la fréquence de la porteuse  $\omega_0$ .

Il s'agit maintenant d'exprimer le courant  $J$  et la polarisation non-linéaire  $P_{NL}$  en fonction du champ électrique.

Afin d'expliciter  $J$ , je vais suivre la méthode de Sprangle et al. [16] basée sur l'équation de continuité qui exprime la conservation du nombre de particules :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div}(\rho v) = S \quad (1.22)$$

$S$  est le terme source correspondant à la création d'électrons par le champ électromagnétique. Il est proportionnel au taux d'ionisation.

L'équation de conservation de la quantité de mouvement peut alors s'écrire sous la forme :

$$m_e \rho \frac{\partial v}{\partial t} = \rho e E - m_e v S - m_e \rho \omega_c v \quad (1.23)$$

$\omega_c$  est la fréquence de collision.

En exprimant  $J$  sous la forme  $J = \rho e v$  on obtient :

$$e \frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div} J = e S$$

Or les équations de Maxwell indiquent :

$$\text{div} J = 0$$

Ainsi : 
$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = S$$

Si l'on reporte  $S$  dans l'équation (1.20) on a :

$$m_e \rho \frac{\partial v}{\partial t} = \rho e E - m_e v \frac{\partial \rho}{\partial t} - m_e \rho \omega_c v$$

En multipliant cette équation par  $e$  et en divisant par  $m_e$  on arrive à :

$$\frac{\partial J}{\partial t} = \frac{e^2}{m_e} \rho E - \omega_c J \quad (1.24)$$

La résolution de cette équation est donnée en annexe 2 en considérant que les fonctions

$\xi(t)$  et  $\rho(t)$  varient peu dans le domaine de variation de  $e^{(i\omega_0 - \omega_c)t}$ .

L'expression de l'évolution de J s'écrit alors :

$$\frac{\partial J}{\partial t} = \frac{e^2}{m_e} \omega_0 \frac{\omega_0 - i\omega_c}{\omega_0^2 + \omega_c^2} \rho(t) \xi(t) e^{-i(\omega_0 t - k_0 z)} \quad (1.25)$$

L'expression (1.15) donne la polarisation non-linéaire sous la forme :

$$P_{NL}(t) = \frac{3}{4} \varepsilon_0 \chi^{(3)} |E(t)|^2 E(t)$$

avec  $E(t) = \xi(x, y, z, t) e^{-i(\omega_0 t - k_0 z)}$

$$\text{d'où } P_{NL}(t) = \frac{3}{4} \varepsilon_0 \chi^{(3)} |\xi(t)|^2 \xi(t) e^{-i(\omega_0 t - k_0 z)} \quad (1.26)$$

En dérivant (1.26) deux fois par rapport au temps et en considérant une enveloppe lentement variable le terme perturbatif relatif à la polarisation non-linéaire s'écrit :

$$\frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2} = -\frac{3}{4} \omega_0^2 \varepsilon_0 \chi^{(3)} |\xi(t)|^2 \xi(t) e^{-i(\omega_0 t - k_0 z)} \quad (1.27)$$

Les expressions des termes perturbatifs (1.25) et (1.27) sont introduites dans l'équation d'évolution du champ électrique. Si la partie rapidement variable du champ est éliminée on obtient l'équation d'évolution de l'enveloppe du champ électrique :

$$\Delta_T \xi + 2ik_0 \frac{\partial}{\partial Z} \left( 1 + \frac{i}{k_0 V_g} \frac{\partial}{\partial \tau} \right) \xi - k_0 k_0'' \frac{\partial^2 \xi}{\partial \tau^2} = -\mu_0 \left( i\omega_0 \frac{e^2}{m_e} \frac{\omega_c + i\omega_0}{\omega_c^2 + \omega_0^2} \rho \xi + \frac{3}{4} \omega_0^2 \varepsilon_0 \chi^{(3)} |\xi|^2 \xi \right)$$

On appelle T l'opérateur  $\left(1 + \frac{i}{k_0 V_g} \frac{\partial}{\partial \tau}\right)$ .

et on exprime l'équation d'évolution sous la forme :

$$T \frac{\partial \xi}{\partial Z} = \frac{i}{2k_0} \Delta_T \xi - \frac{ik_0''}{2} \frac{\partial^2 \xi}{\partial \tau^2} + \frac{i\mu_0}{2k_0} \left( i\omega_0 \frac{e^2}{m_e} \frac{\omega_c + i\omega_0}{\omega_c^2 + \omega_0^2} \rho \xi + \frac{3}{4} \omega_0^2 \varepsilon_0 \chi^{(3)} |\xi|^2 \xi \right)$$

La densité critique est de la forme  $\rho_c = \omega_0^2 \frac{\varepsilon_0 m_e}{e^2}$

et la section efficace de Bremsstrahlung inverse  $\sigma$  liée à l'ionisation par avalanche s'écrit :

$$\sigma = \frac{k_0}{n_0^2 \rho_c} \frac{\omega_0 \omega_c}{(\omega_c^2 + \omega_0^2)} = \frac{k_0}{n_0^2 \rho_c} \frac{\omega_0 \tau_c}{(1 + \omega_0^2 \tau_c^2)}$$

avec  $\omega_c = \frac{1}{\tau_c}$

De plus, la relation entre le champ et l'intensité dans le milieu a déjà été établie :

$$I = \frac{1}{2} n_0 c \varepsilon_0 |\xi|^2$$

L'équation d'évolution de l'enveloppe du champ électrique peut alors s'écrire sous la forme :

$$T \frac{\partial \xi}{\partial Z} = \frac{i}{2k_0} \Delta_T \xi - \frac{ik_0''}{2} \frac{\partial^2 \xi}{\partial \tau^2} - \left[ \frac{\sigma}{2} + i \frac{k_0}{2n_0^2 \rho_c} \right] \rho \xi + i \frac{k_0}{n_0} (n_2 I) \xi$$

On obtient alors l'indice non-linéaire en  $\text{cm}^2/\text{W}$  défini par ( $n = n_0 + n_2 I$ ) :

$$n_2 = \frac{3}{4} \frac{\chi^{(3)}}{n_0^2 c \varepsilon}$$

En exprimant la polarisation non-linéaire dans l'équation d'évolution, on retrouve bien l'expression de l'indice de réfraction non-linéaire  $n_2$  obtenue au paragraphe 1.1.2.

### **1.3.3. Introduction d'un terme d'absorption photonique**

L'équation d'évolution de l'enveloppe du champ électrique obtenue reste incomplète. Un terme relatif à l'absorption photonique du laser pour la création des électrons doit être introduit. L'équation complète s'écrit alors :

$$T \frac{\partial \xi}{\partial Z} = \frac{i}{2k_0} \Delta_T \xi - \frac{ik_0''}{2} \frac{\partial^2 \xi}{\partial \tau^2} - \left[ \frac{\sigma}{2} + i \frac{k_0}{2n_0^2 \rho_c} \right] \rho \xi + i \frac{k_0}{n_0} (n_2 I) \xi - (\text{absorption photons})$$

Il est possible de donner différentes expressions à ce terme supplémentaire suivant le type d'ionisation considérée. Il aura une forme d'absorption à K photons si l'on considère une ionisation multiphotonique, une forme d'absorption tunnel ou encore une forme plus générale basée sur les considérations de Keldysh.

### **1.3.4. Equation finale de l'évolution de l'enveloppe du champ électrique**

L'opérateur T rend compte des couplages spatio-temporels. Il a été défini par :

$$T \equiv 1 + \frac{i}{k_0 V_g} \frac{\partial}{\partial \tau}$$

Dans un souci de compatibilité avec la littérature [18] une nouvelle approximation va être introduite en écrivant :

$$T \equiv 1 + \frac{i}{\omega_0} \frac{\partial}{\partial \tau}$$

Cette approximation revient à assimiler l'indice de groupe à l'indice de phase.

En toute rigueur, le terme relatif à l'effet Kerr optique obtenu à partir du développement de la polarisation non-linéaire traitée en perturbations devrait être complété en le multipliant par l'opérateur  $T^2$ . Alors, en inversant l'opérateur T et en écrivant le

laplacien transverse en coordonnées cylindriques l'équation d'évolution s'écrit sous la forme :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \xi}{\partial Z} = & \frac{i}{2k_0} T^{-1} \left( \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right) \xi \\ & - \frac{ik_0''}{2} \frac{\partial^2 \xi}{\partial \tau^2} \\ & - \left[ \frac{\sigma}{2} + i \frac{k_0}{2n_0^2 \rho_c} \right] T^{-1} (\rho \xi) \\ & + i \frac{k_0}{n_0} T(n_2 I) \xi \\ & - (\text{absorptions photons}) \end{aligned}$$

$\frac{i}{2k_0} \left( \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right) \xi$  est le terme de diffraction dans le milieu d'indice  $n_0$  en coordonnées cylindriques.

$-\frac{ik_0''}{2} \frac{\partial^2 \xi}{\partial \tau^2}$  est le terme de dispersion de vitesse de groupe.

$-\left[ \frac{\sigma}{2} + i \frac{k_0}{2n_0^2 \rho_c} \right] \rho \xi$  représente l'influence du plasma d'électrons sur la propagation de

l'onde. Ce terme est constitué de deux parties jouant un rôle différent :

$-\left[ \frac{\sigma}{2} \right] \rho \xi$  représente l'absorption de l'onde par le plasma d'électrons créé.

$-\left[ i \frac{k_0}{2n_0^2 \rho_c} \right] \rho \xi$  est le terme de défocalisation du faisceau laser par le plasma.

On peut remarquer que le rôle joué par ces deux éléments augmente avec la densité électronique  $\rho$ .

$i \frac{k_0}{n_0} (n_2 I) \xi$  est le terme relatif à l'effet Kerr optique responsable de l'autofocalisation du

faisceau laser.

$k_0''$  est lié à la variation de la vitesse de groupe en fonction de la pulsation et est issu du développement de Taylor au second ordre. Nous limitant aux corrections du second ordre, l'opérateur  $T^{-1}$  au niveau du terme de dispersion de vitesse de groupe sera négligé car il introduirait une correction de correction superflue en l'état actuel des recherches sur la propagation d'impulsions laser ultra-courtes.

Les opérateurs  $T$  et  $T^{-1}$  sont considérés comme des termes correctifs. Les effets physiques qu'ils décrivent sont nommés de façon précise dans la littérature. L'opérateur  $T^{-1}$  devant le laplacien transverse décrit les effets de focalisation spatio-temporelle (space-time focusing) alors que le  $T$  devant la non-linéarité cubique du terme d'autofocalisation comportant l'indice non-linéaire décrit des effets d'auto-raïdissement de l'impulsion (self-steepening).

L'opérateur  $T$  permet également de prendre en compte d'éventuelles variations rapides de l'enveloppe du champ électrique ne pouvant être prises en compte par l'approximation de l'enveloppe lentement variable. La présence d'un plasma peut en effet faire varier de façon rapide l'enveloppe du champ.

De plus, cette équation de propagation est couplée à l'équation d'évolution de la densité électronique.

$$\frac{d\rho(t)}{dt} = \alpha I(t)\rho(t) + (\text{terme de création d'électrons}) - \frac{\rho(t)}{\tau_{rec}}$$

$[\alpha I(t)\rho(t)]$  est le terme relatif à la création d'électrons par avalanche électronique.

$\left[ -\frac{\rho(t)}{\tau_{rec}} \right]$  représente la décroissance exponentielle du plasma.

Les bases de cette équation d'évolution de la densité électronique seront justifiées au chapitre 4.



## Références bibliographiques

- [1] G. Bruhat, Cours de physique générale, Optique, Sixième édition par A. Kastler, Editeur Masson, 1992, p361.
- [2] M. May et A-M Cazabat, Optique, Licence de Physique, Editeur Dunod, Paris, 1996, p23.
- [3] R.W. Boyd, Nonlinear Optics, Editeur Academic Press, Londres, 1992.
- [4] Y.R. Shen, The Principles of Nonlinear Optics. John Wiley & Sons, 1984.
- [5] R.Y. Chiao, E. Garmire and C.H. Townes, Phys. Rev. Lett. 13, 479 (1964).
- [6] J. Marburger, Self-focusing Theory, Prog. Quantum Electron. 4, 35 (1975).
- [7] L.V. Keldysh, Soviet Physics JETP 20, 1307 (1965).
- [8] A.-C. Tien, S. Backus, H. Kapteyn, M. Murnane and G. Mourou, Phys. Rev. Lett. 82, 3883 (1999).
- [9] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier and G. Mourou, Opt. Lett. 20, p73 (1995).
- [10] E.T.J. Nibbering, P.F. Curley, G. Grillon, B. Prade, M. Franco, F. Salin and A. Mysyrowicz, Opt. Lett. 21, p62 (1996).
- [11] A. Brodeur, C.Y. Chien, F.A. Ilkov, S.L. Chin, O.G. Kosareva and V.P. Kandidov, Opt. Lett. 22, p304 (1997).
- [12] S. Tzortzakis, B. Lamouroux, A. Chiron, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz and S.D. Moustazis, Opt. Lett. 25, p1270 (2000).
- [13] S. Tzortzakis, L. Bergé, A. Couairon, M. Franco, B. Prade and A. Mysyrowicz, Phys. Rev. Lett. 86, p5470 (2001).
- [14] E. Baubeau, C. Le Blanc, F. Salin, Conference on Lasers and Electro-Optics, 407 (1997).

- [15] I.G. Koprnikov, A. Suda, P. Wang, K. Midorikawa, *Phys. Rev. Lett.* 84, p 3847 (2000).
- [16] S. Tzortzakis, L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, A. Couairon and L. Bergé, *Phys. Rev. Lett.* 87, p 213902 (2001).
- [17] P. Sprangle, E. Esarey and J. Krall, *Phys. Rev. E* 54, p 4211 (1996).
- [18] T. Brabec and F. Krausz, *Phys. Rev. Lett.* 78, 3282 (1997).

## *Chapitre 2*

### ***ÉTUDE DE LA PROPAGATION DES IMPULSIONS***

#### ***DANS UN RÉGIME DE FAIBLE FOCALISATION***

Ce chapitre basé sur des résultats expérimentaux traite de la propagation d'impulsions laser femtosecondes intenses dans des milieux solides transparents. Un milieu est dit transparent s'il ne présente pas d'absorption linéaire à la longueur d'onde utilisée.

Je vais présenter la propagation d'impulsions laser femtosecondes dans la silice amorphe ainsi que dans le quartz (forme cristalline de la silice) et dans un verre de fluorures type ZBLAN (Zirconium, Baryum, Lanthane, Aluminium, Sodium). Comme dans l'air, sous l'influence des phénomènes physiques non-linéaires présentés au chapitre précédent, les impulsions intenses qui se propagent dans un milieu transparent ne diffractent plus simplement selon les propriétés des faisceaux gaussiens mais peuvent s'auto-organiser pour former un filament. Nous avons étudié expérimentalement cette propagation non-linéaire dans la silice de façon approfondie et plus simplement dans le quartz et le ZBLAN. Je montre dans ce chapitre la première longue filamentation laser dans un solide qui soit bien caractérisée expérimentalement. L'originalité de cette partie vient également de la première comparaison avec une simulation numérique basée sur un code de propagation.

Une partie des résultats de ce chapitre ont été obtenus en collaboration avec Stelios Tzortzakis qui les a également présentés dans son manuscrit qui traite de la filamentation des impulsions laser femtosecondes dans des milieux non-linéaires transparents.

## **2.1. Expériences de propagation longue distance sans endommagement**

### **2.1.1. Le laser**

La chaîne laser produisant les impulsions laser utilisée pour cette étude est constituée de trois cavités laser en série. Le premier laser est un laser continu à Argon. C'est un laser dit de pompage. Il émet en continu un faisceau laser multi-raies. Il excite les deux barreaux de saphir dopé au titane ( $\text{Al}_2\text{O}_3: \text{Ti}$ ) des deux cavités laser femtosecondes qui suivent. La première cavité appelée MirA est de marque Coherent. Elle produit des impulsions de 160 fs à 800 nm et avec un taux de répétition de 76 MHz. Cette cavité est l'oscillateur femtoseconde. Les impulsions qu'il produit sont faiblement énergétiques (10 nJ). Avec une fréquence réglable de 50 à 250 kHz, une impulsion est introduite dans la deuxième cavité laser femtoseconde appelée amplificateur régénératif. Il s'agit d'un RegA de marque Coherent. Les impulsions y sont amplifiées par de multiples passages à travers le barreau de Ti:Saphir. Les impulsions laser produites en bout de chaîne ont une longueur d'onde centrale de 800 nm. La largeur à mi-hauteur du spectre est de l'ordre de 8 à 10 nm. Les impulsions de 4  $\mu\text{J}$  sont produites avec un taux de répétition réglable de 50 à 250 kHz et avec une durée à mi-hauteur de 160 femtosecondes.

### **2.1.2. Le montage expérimental**

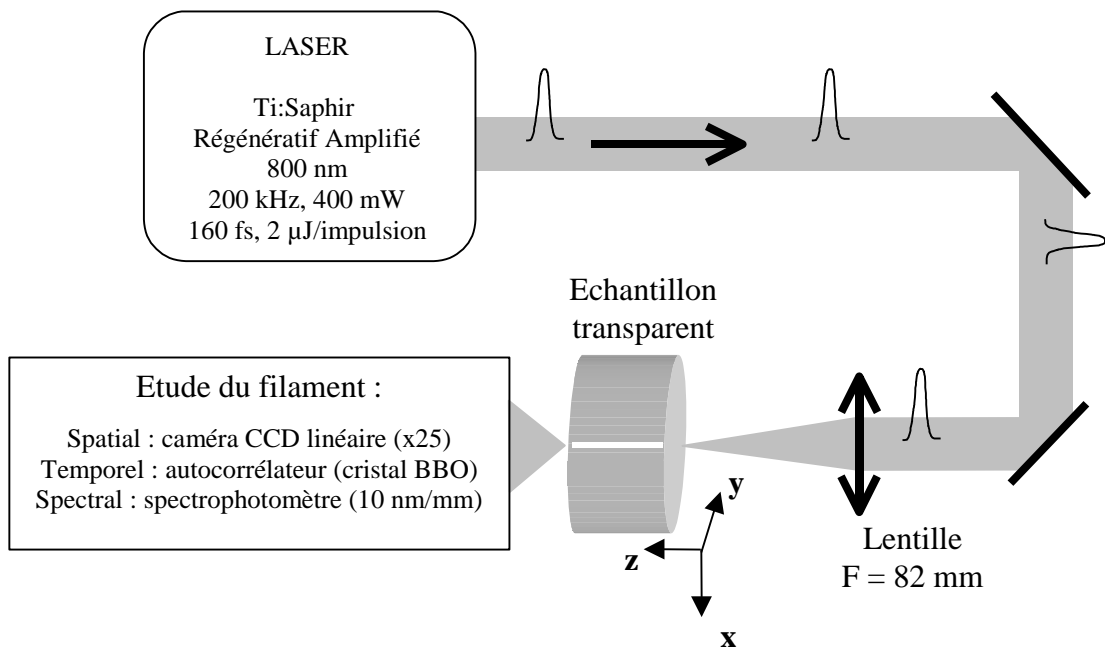
Les impulsions laser femtosecondes produites par la chaîne laser sont focalisées par une lentille simple. Le foyer de la lentille est positionné au voisinage de la face d'entrée de l'échantillon dans lequel nous voulons étudier la propagation des impulsions.

L'échantillon peut être déplacé le long de l'axe laser z ainsi que dans le plan (xy) perpendiculaire grâce à trois moteurs pas-à-pas. Ces trois moteurs peuvent être

contrôlés manuellement ou par l'intermédiaire d'un ordinateur et d'un programme réalisé avec le logiciel Labview de National Instruments.

Les impulsions ont été étudiées spatialement, temporellement et spectralement le long de leur propagation dans l'échantillon solide transparent. Les études spatiales ont été faites en imageant, à l'aide d'un objectif de microscope (x25), le faisceau laser sur le détecteur d'une caméra infrarouge linéaire CCD. Pour caractériser temporellement les impulsions le long de leur propagation nous avons utilisé un autocorrélateur. Le spectre des impulsions a été enregistré grâce à un spectrophotomètre à fibre optique.

Le schéma de la figure 2.1 donne une vision globale du dispositif expérimental.



*Figure 2.1: Vue d'ensemble du système optique expérimental.*

### **2.1.3. Résultats expérimentaux**

La silice fondue a été le matériau le plus utilisé lors de mes études sur la propagation des impulsions laser femtosecondes. J'ai choisi d'étudier la propagation non-linéaire des impulsions laser femtosecondes dans la silice amorphe pour des raisons d'intérêt scientifique et de simplicité qui découlent de plusieurs constatations simples. La silice qui se présente sous une forme amorphe est un verre très courant. Il s'agit notamment d'un matériau standard pour la fabrication d'éléments optiques tels que les lentilles, les prismes et les hublots. La silice est également le matériau de base pour la fabrication des fibres optiques. Ses caractéristiques macroscopiques sont donc identiques dans toutes les directions. Son ellipsoïde des indices est une sphère.

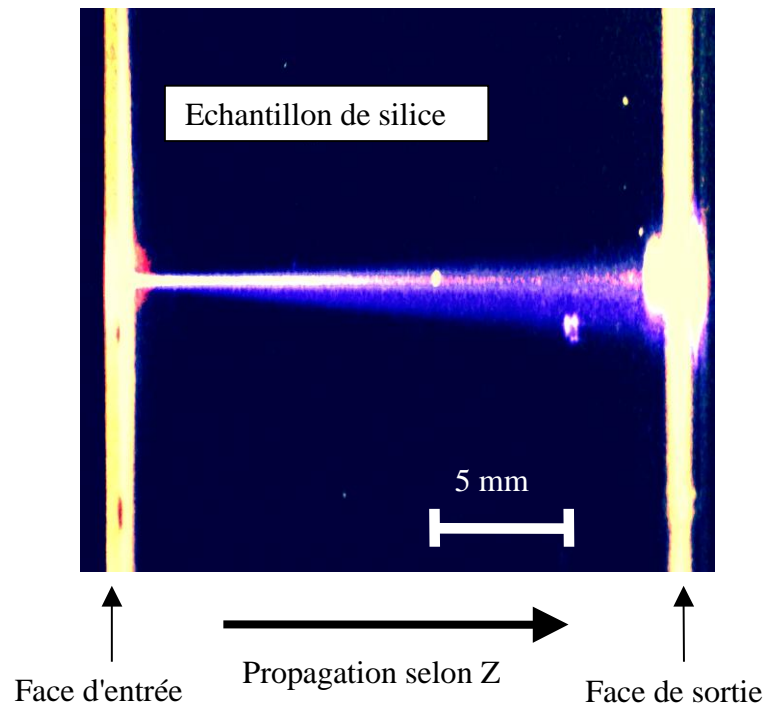
Les résultats expérimentaux sur la propagation dans le quartz et le ZBLAN seront donnés ultérieurement de manière à compléter le travail poussé réalisé sur la silice.

#### **2.1.3.1. Première observation de la filamentation dans la silice**

Afin de favoriser la formation d'une filamentation laser nous avons focalisé le faisceau laser à travers une lentille de focale de 82 mm. Le point de focalisation laser se trouve au voisinage de l'entrée de l'échantillon de silice.

La première étude expérimentale a révélé dans un cube de silice fondue de 2 cm d'épaisseur une propagation particulière produisant un cône étroit blanc très lumineux.

La figure 2.2 montre cet effet.



*Figure 2.2:* Photo prise en vue de dessus de l'échantillon de silice de 2 cm d'épaisseur dans lequel se propage un faisceau laser femtoseconde. Observation d'une forte émission de lumière blanche. Impulsions : 800 nm, 2  $\mu$ J, 160 fs, 200 kHz. Focalisation au niveau de la face d'entrée par une lentille de 82 mm de focale.

Afin de conserver cette propagation particulière il est nécessaire de déplacer en permanence l'échantillon dans le plan (xy) perpendiculaire à l'axe laser z. Il est possible que de petits défauts soient induits dans la silice. Ils peuvent être provoqués par une seule impulsion ou par effet cumulatif. Etant donné le taux de répétition élevé de notre laser (200 kHz), la silice n'ayant pas le temps d'évacuer tout l'apport d'énergie entre deux impulsions, il est également possible que la température du milieu augmente localement du fait de l'accumulation de dépôt d'énergie. Si l'on ne déplace pas l'échantillon, l'émission intense de lumière blanche accompagnant la propagation non-linéaire s'affaiblit après quelques secondes puis rapidement disparaît complètement. Pour maintenir cette propagation particulière que nous caractériserons comme étant une filamentation laser, l'échantillon est déplacé avec des vitesses variant de 1 à 100  $\mu$ m/s.

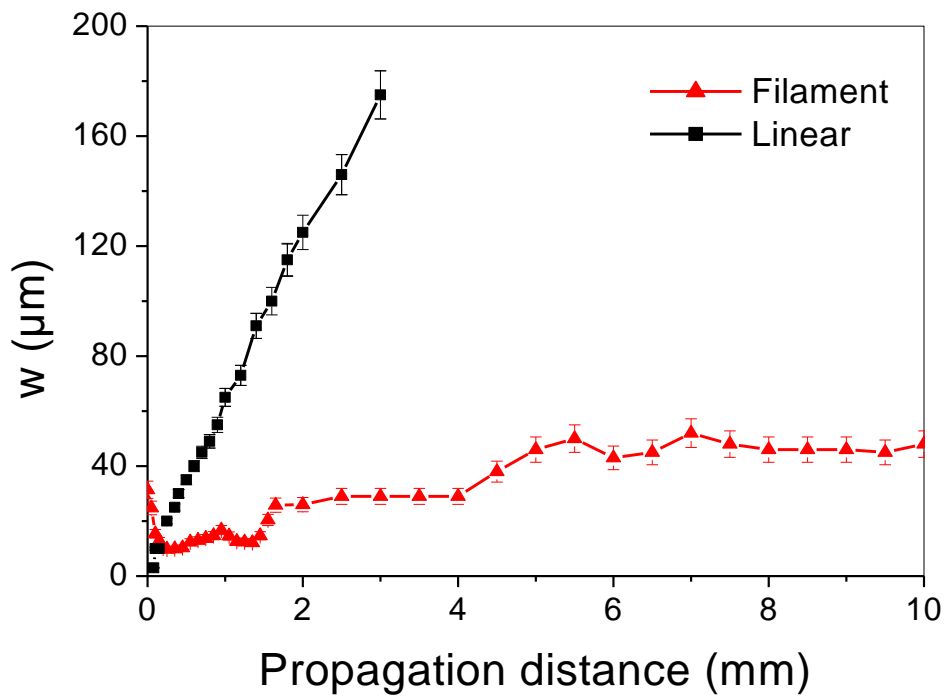
### **2.1.3.2. Caractérisation spatiale du filament le long de sa propagation**

Nous avons caractérisé spatialement la propagation du faisceau laser sur 1 cm. Pour cela nous avons imagé, à l'aide d'un objectif de microscope, le faisceau laser sur le détecteur d'une caméra infrarouge linéaire CCD. Afin de distinguer les détails de cette propagation il est nécessaire d'utiliser un objectif de fort grossissement (x25) dont la distance de travail permet de sonder l'échantillon sur une profondeur de 3 mm. Pour réaliser une étude sur 10 mm, nous avons travaillé avec trois échantillons d'épaisseur différentes (2, 5 et 10 mm).

Le graphique de la figure 2.3 montre les résultats expérimentaux pour un faisceau de faible intensité qui diffracte selon les propriétés des faisceaux gaussiens. Le faisceau intense de 2  $\mu\text{J}$  par impulsion garde un rayon transverse ou "waist" entre 10 et 40  $\mu\text{m}$ . La propagation non-linéaire a conduit à la formation d'une filamentation laser. Sous l'effet de phénomènes non-linéaires les impulsions se sont auto-organisées pour former un filament laser confinant l'énergie lumineuse sur plusieurs mm.

Le "waist" est défini comme le rayon à  $\frac{1}{e^2}$  du maximum en intensité du faisceau gaussien.



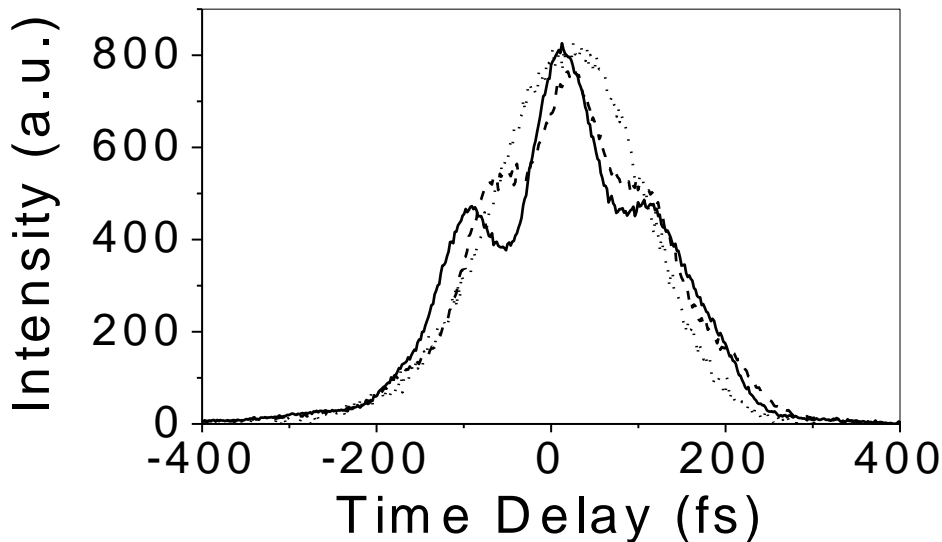


*Figure 2.3: Mesure de la taille du filament (waist) le long de sa propagation dans la silice. Pour comparaison, la diffraction mesurée dans le régime de propagation linéaire à faible énergie (50 nJ) est montrée. Le zéro de l'axe des abscisses correspond à l'entrée de l'échantillon de silice. Impulsions : 800 nm, 2  $\mu\text{J}$ , 160 fs, 200 kHz.*

### **2.1.3.3. Caractérisation temporelle du filament : autocorrélation de l'impulsion**

L'étude temporelle de cette propagation est faite grâce à un autocorrélateur non-linéaire. L'autocorrélation des impulsions est enregistrée après traversée de chacun des échantillons d'épaisseur différente. Le graphique de la figure 2.4 montre ces enregistrements. La forme de l'autocorrélation d'une impulsion du faisceau initial, c'est-à-dire avant propagation dans l'échantillon, indique que l'impulsion initiale a un profil gaussien. On peut aussi calculer grâce à cet enregistrement la largeur à mi-hauteur de 160 fs qui est bien identique à la largeur en sortie de la chaîne laser régénérative.

L'autocorrélation après propagation dans l'échantillon de 2 mm montre une forme à trois pics. Cette forme révèle la présence de deux impulsions puisqu'une impulsion à  $n$  pics a une autocorrélation à  $2n-1$  pics. On retrouve cette même forme après propagation dans l'échantillon de 5 mm.



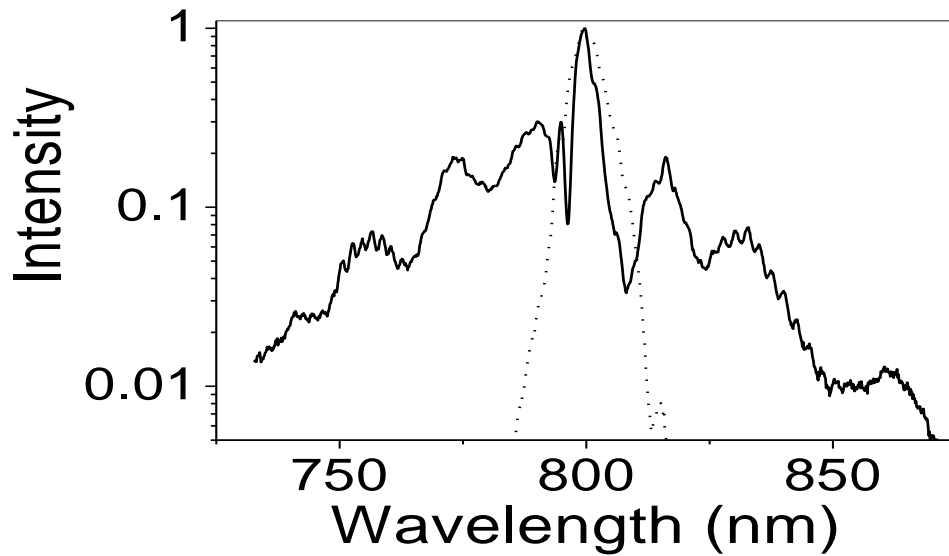
*Figure 2.4: Mesure de l'autocorrélation des impulsions. Pointillés : impulsion initiale. Trait plein : après 2 mm de propagation dans la silice (forme à trois bosses). Tirets : après 5 mm de propagation dans la silice (forme à trois bosses). Impulsions : 800 nm, 2  $\mu$ J, 160 fs, 200 kHz.*

#### **2.1.3.4. Spectre du filament**

Le graphique 2.5 montre l'enregistrement du spectre du faisceau laser avant et après propagation dans la silice. Ces enregistrements ont été réalisés grâce à un spectrophotomètre à fibre optiques.

On observe que le spectre initial est bien centré autour de 800 nm. Après propagation dans l'échantillon de 10 mm de silice fondue, le spectre montre un fort élargissement vers l'IR comme vers l'UV. De plus, on observe des interférences de 16 nm. Cela

correspond à des impulsions de 60 fs espacées de 120 fs. Ces franges sont donc en accord avec la forme à trois pics des autocorrélations des impulsions.



*Figure 2.5: Enregistrement du spectre de l'impulsion initiale (pointillés) et du filament après 10 mm de propagation dans la silice (trait plein). Impulsions : 800 nm, 2  $\mu$ J, 160 fs, 200 kHz.*

Si une telle filamentation dans la silice fondue avait été prévue par Henz et Herrmann [1], elle n'avait jamais été montré de façon certaine dans les solides transparents. Au début de mes travaux, seules deux publications avaient mentionné l'auto-guidage des impulsions femtosecondes dans le Ti :saphir [2] et dans la silice [3]. De plus nous avons fait la première caractérisation approfondie de ce phénomène. Il s'agit maintenant de comparer ces résultats expérimentaux aux résultats numériques d'un code de calcul basé sur l'équation de propagation développée au chapitre 1.

### **2.1.3.5. Polarisation du filament**

Le faisceau laser fourni par la cavité laser est polarisé linéairement. Lorsqu'il se propage de façon linéaire, comme c'est le cas pour nos impulsions avant focalisation au niveau de l'échantillon solide transparent, il ne subit pas de modification de la polarisation.

Cependant, l'effet Kerr optique conduisant à l'auto-focalisation du faisceau peut théoriquement induire des modifications de la polarisation. Certains groupes étudiant la propagation non-linéaire des impulsions ultra-courtes développent d'ailleurs des codes numériques où deux équations de propagation du champ électrique évoluent en parallèle en interagissant grâce à des termes de couplage [4].

Nous avons étudié la polarisation du faisceau après propagation sous la forme d'un filament à travers un échantillon de silice d'épaisseur 1 cm. La polarisation initialement linéaire horizontale reste inchangée. Une dépolarisation éventuelle du faisceau serait inférieure à 1%.

## 2.2. Modèle de propagation impulsif dans un milieu transparent

Ce paragraphe va donner les résultats numériques calculés par un code de propagation afin de les comparer aux résultats expérimentaux. Ce code est basé sur l'équation d'évolution du champ électrique développée au premier chapitre. Cette équation va cependant être complétée par un nouveau terme afin de tenir compte de l'absorption multiphotonique.

Je donnerai également l'équation d'évolution de la densité électronique basée sur les principes de l'ionisation décrits au paragraphe 1.2.

Nous avons établi au paragraphe 1.4, en utilisant les approximations et développements adéquats, l'équation d'évolution de l'enveloppe  $\xi$  du champ électrique. Ainsi :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \xi}{\partial Z} = & \frac{i}{2k_0} T^{-1} \left( \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right) \xi \\ & - \frac{ik_0''}{2} \frac{\partial^2 \xi}{\partial \tau^2} \\ & - \left[ \frac{\sigma}{2} + i \frac{k_0}{2n_0^2 \rho_c} \right] T^{-1} (\rho \xi) \\ & + i \frac{k_0}{n_0} T(n_2 I) \xi \\ & - (\text{absorptions photons}) \end{aligned}$$

Je rappelle que :

$\frac{i}{2k_0} \left( \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right) \xi$  est le terme de diffraction dans le milieu d'indice  $n_0$  en coordonnées cylindriques.

$-\frac{ik_0''}{2} \frac{\partial^2 \xi}{\partial \tau^2}$  est le terme de dispersion de vitesse de groupe.

$-\left[\frac{\sigma}{2} + i\frac{k_0}{2n_0^2\rho_c}\right]\rho\xi$  représente l'influence du plasma d'électrons sur la propagation de

l'onde. Ce terme est constitué de deux parties jouant un rôle différent.  $-\left[\frac{\sigma}{2}\right]\rho\xi$

représente l'absorption de l'onde par le plasma d'électrons créé.  $-\left[i\frac{k_0}{2n_0^2\rho_c}\right]\rho\xi$  est le

terme de défocalisation du faisceau laser par le plasma. On peut remarquer que le rôle joué par ces deux éléments augmente avec la densité  $\rho$  des électrons dans la bande de conduction.

$i\frac{k_0}{n_0}(n_2I)\xi$  est le terme relatif à l'effet Kerr optique responsable de l'autofocalisation du

faisceau laser.

Lorsque l'intensité laser n'est pas trop élevée comme c'est le cas dans les expériences que je viens de présenter, l'ionisation peut être décrite par l'effet multiphotonique. Afin de simuler les expériences précédentes, nous avons donc exprimé le terme d'absorption photonique dans l'équation d'évolution du champ électrique par un terme relatif à l'absorption multiphotonique. L'équation complète de l'évolution du champ électrique s'écrit alors [5]:

$$(2.1) \quad \frac{\partial \xi}{\partial Z} = \frac{i}{2k_0} T^{-1} \left( \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right) \xi - \frac{ik_0}{2} \frac{\partial^2 \xi}{\partial \tau^2} \\ - \left[ \frac{\sigma}{2} + i\frac{k_0}{2n_0^2\rho_c} \right] T^{-1}(\rho\xi) \\ + i\frac{k_0}{n_0} T(n_2I)\xi \\ - \frac{K\hbar\omega_0\sigma_K\rho_{at}}{2} |\xi|^{2K-2} \xi$$

K est défini comme au chapitre 1.  $\sigma_K$  est la section efficace d'absorption pour le plus petit K tel que  $K\hbar\omega_0 \geq E_g$  avec  $E_g$  la bande interdite du matériau transparent.

L'équation d'évolution de la densité électronique couplée à cette équation de propagation est de la forme :

$$\frac{d\rho(t)}{d\tau} = \alpha I(t)\rho(t) + (\text{terme de création d'électrons}) - \frac{\rho(t)}{\tau_{rec}}$$

$[\alpha I(t)\rho(t)]$  est le terme relatif à la création d'électrons par avalanche électronique.

$\left[ -\frac{\rho(t)}{\tau_{rec}} \right]$  représente la décroissance exponentielle du plasma.

Si l'on considère une ionisation multiphotonique, le terme de création d'électrons est de la forme :  $\sigma_K I(t)^K$ . D'où l'équation d'évolution de la densité électronique utilisée dans les simulations présentées dans ce chapitre :

$$\frac{\partial \rho}{\partial \tau} = \sigma_K I^K + \alpha \rho |\xi|^2 - \frac{\rho}{\tau_{rec}} \quad (2.2)$$

$\sigma_K I^K$  est le terme relatif à l'ionisation multiphotonique.

$\alpha \rho |\xi|^2$  est le terme de création d'électrons par avalanche.

$\frac{\rho}{\tau_{rec}}$  modélise la recombinaison rapide du plasma.

Rappelons les paramètres et constantes utilisées dans ces deux équations couplées :

$\xi(r, t, z)$  est l'enveloppe complexe du champ électrique.

$\rho(t)$  est la densité d'électrons libres.

$\tau$  est la variable de temps retardée.

$$\tau = t - \frac{z}{V_g}$$

$V_g = \left[ \frac{d\omega}{dk} \right]_{\omega=\omega_0}$  est la vitesse de groupe du paquet d'onde à la fréquence de la porteuse.

$k_0$  est le nombre d'onde dans le milieu.

$$k_0 = k(\omega_0) = \frac{n(\omega_0)\omega_0}{c} = \frac{n_0\omega_0}{c}$$

$n_0 = n(\omega_0)$  est l'indice de réfraction du milieu pour la longueur d'onde centrale du rayonnement laser.

$E_g$  est la bande interdite du matériau.

$\tau_{\text{rec}}$  est le temps caractéristique de recombinaison électronique.

$k_0''$  est la dispersion de vitesse de groupe.

$$k_0'' = \left[ \frac{d^2k}{d\omega^2} \right]_{\omega=\omega_0}$$

$n_2$  est l'indice de réfraction non-linéaire du milieu.

$\sigma$  est la section efficace de Bremsstrahlung inverse.

$$\sigma = \frac{k_0}{n_0^2 \rho_c} \frac{\omega_0 \omega_c}{(\omega_c^2 + \omega_0^2)} = \frac{k_0}{n_0^2 \rho_c} \frac{\omega_0 \tau_c}{(1 + \omega_0^2 \tau_c^2)}$$

$\tau_c$  est le temps caractéristique de collision.

$$\tau_c = \frac{1}{\omega_c}$$



## **2.3. Simulations numériques**

Les deux équations couplées présentées précédemment sont à la base du code de propagation développé par Arnaud Couairon. Ce paragraphe va présenter les résultats numériques et faire le parallèle avec les résultats expérimentaux.

### **2.3.1. Principes des calculs numériques et validité du code de propagation**

Les simulations numériques sont réalisées à partir d'un code à deux dimensions à symétrie de révolution. Son schéma de base a été détaillé dans l'article de A. Couairon [6]. Cela consiste en une décomposition spectrale de Fourier dans le temps et un schéma de Crank-Nicholson pour la partie spatiale (coordonnées  $z$  et  $r$ ) appliqué à chaque composante spectrale. Cela nous permet de prendre en compte tous les effets du modèle couplant l'espace et le temps. L'évolution de la densité électronique est calculée pour chaque position  $(r,z)$  de façon semi-analytique en intégrant pas-à-pas l'équation (2.2). Utiliser la solution analytique de l'équation (2.2) à chaque pas de temps permet de considérer les coefficients comme constants.

### **2.3.2. Conditions initiales des simulations numériques**

Impulsion laser initiale :

- impulsion gaussienne de durée 160 fs
- fréquence centrale  $\omega_0$  ( $\lambda_0 = 800$  nm)
- onde plane à l'entrée de l'échantillon avec un col (waist) de 30  $\mu\text{m}$ .
- champ électrique polarisé linéairement et symétrie radiale
- énergie : 2  $\mu\text{J}$  par impulsion

- durée de l'impulsion : 160 fs

Ces caractéristiques donnent une puissance plus de 5 fois supérieure à la puissance critique d'auto-focalisation par effet Kerr optique.

Propagation dans la silice fondue :

- indice de réfraction linéaire  $n_0$  (silice à 800 nm) = 1.453 [7]
- indice de réfraction non-linéaire  $n_2 = 3.2 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$
- puissance critique pour l'auto-focalisation  $P_{cr} = \lambda_0^2 / 2\pi n_0 n_2 = 2.3 \text{ MW}$
- bande interdite de la silice  $E_g$  (silice) = 7.6 eV
- nombre de photons nécessaires pour la transition interbande  $K = 5$ .
- coefficient d'ionisation multiphotonique  $\sigma_K = 1.298 \cdot 10^{-55} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{2K}/\text{W}^K$
- temps caractéristique de recombinaison électronique  $\tau_{rec} = 150 \text{ fs}$  [8]
- la section efficace de Bremsstrahlung inverse  $\sigma = 2.78 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$  [9]
- temps caractéristique de collision  $\tau_c = \frac{1}{\omega_c} = 10^{-14} \text{ s}$
- dispersion de vitesse de groupe  $k_0'' = \left[ \frac{d^2 k}{d\omega^2} \right]_{\omega=\omega_0} = 361 \text{ fs}^2/\text{cm}$

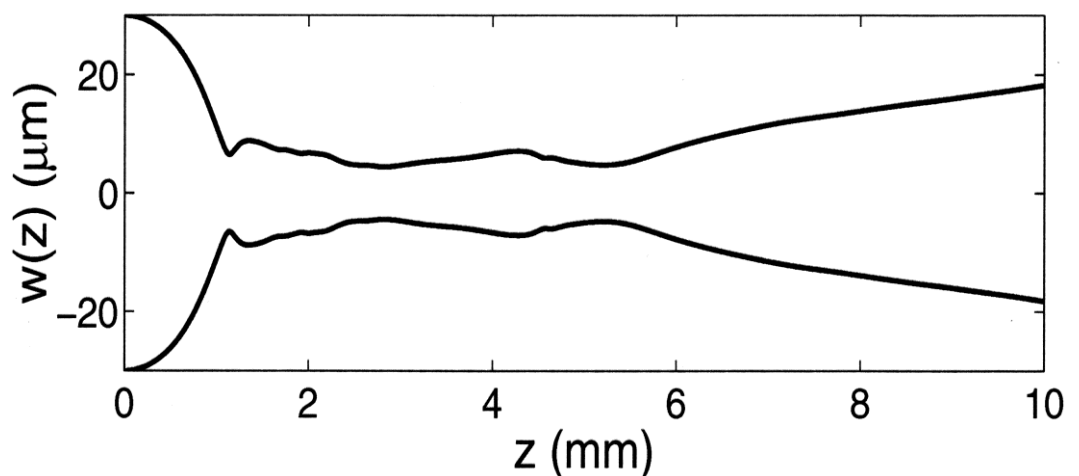
**2.3.3. Résultats numériques de la propagation au niveau spatial**

La figure 2.6 montre l'évolution spatiale calculée numériquement du faisceau laser femtoseconde pendant sa propagation dans 10 mm de silice amorphe. Le col (ou waist) à l'entrée a été pris égal au waist du faisceau expérimental c'est-à-dire 30  $\mu\text{m}$ .

Dans cette propagation du faisceau laser, il faut distinguer trois principales parties. De la face d'entrée jusqu'à une profondeur de 1.2 mm, il apparaît clairement que le faisceau s'autofocalise sous l'effet Kerr optique. Lorsque l'intensité lumineuse est suffisante, un

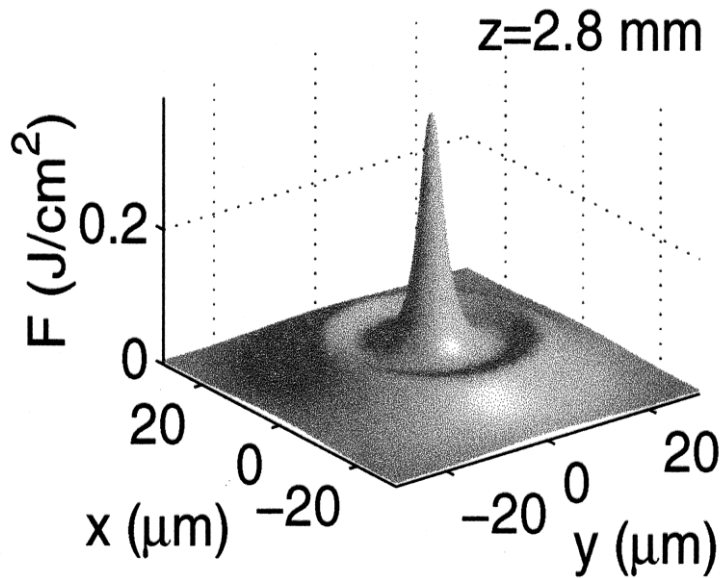
plasma est créé. Ce plasma défocalise l'impulsion laser. Alors les différents effets non-linéaires décrits au chapitre 1 interviennent et conduisent à la propagation auto-guidée sur 4 à 5 mm. Lors de la troisième phase de la propagation on observe que le faisceau commence à diffracter légèrement. En effet, tout au long de sa propagation, le faisceau subit des absorptions multiphotoniques. Par conséquent, l'intensité lumineuse diminue. L'effet Kerr est alors moins important, l'ionisation multiphotonique joue un rôle plus faible. Le filament faiblit et s'élargit du fait de la diffraction qui ne peut plus être compensée.

Ces résultats numériques sont en bon accord avec les résultats expérimentaux montrés au paragraphe précédent. Seule différence notable, la filamentation a été observée expérimentalement sur 2 cm alors que numériquement, elle ne semble être possible que sur 1 cm.



*Figure 2.6: Simulation numérique. Représentation du diamètre calculé du filament sur une propagation de 1 cm dans la silice. Impulsion : 800 nm, 2  $\mu\text{J}$ , 160 fs. Onde plane à l'entrée de la silice avec un waist de 30  $\mu\text{m}$ .*

La figure 2.7 montre le filament après une propagation de 2.8 mm. Il est étroit et un anneau s'est formé autour du pic principal. Ce type de comportement a été également observé expérimentalement.



*Figure 2.7: Simulation numérique. Représentation 3D de la fluence de l'impulsion après 2.8 mm de propagation dans la silice. Impulsion : 800 nm, 2  $\mu$ J, 160 fs. Onde plane à l'entrée de la silice avec un waist de 30  $\mu$ m.*

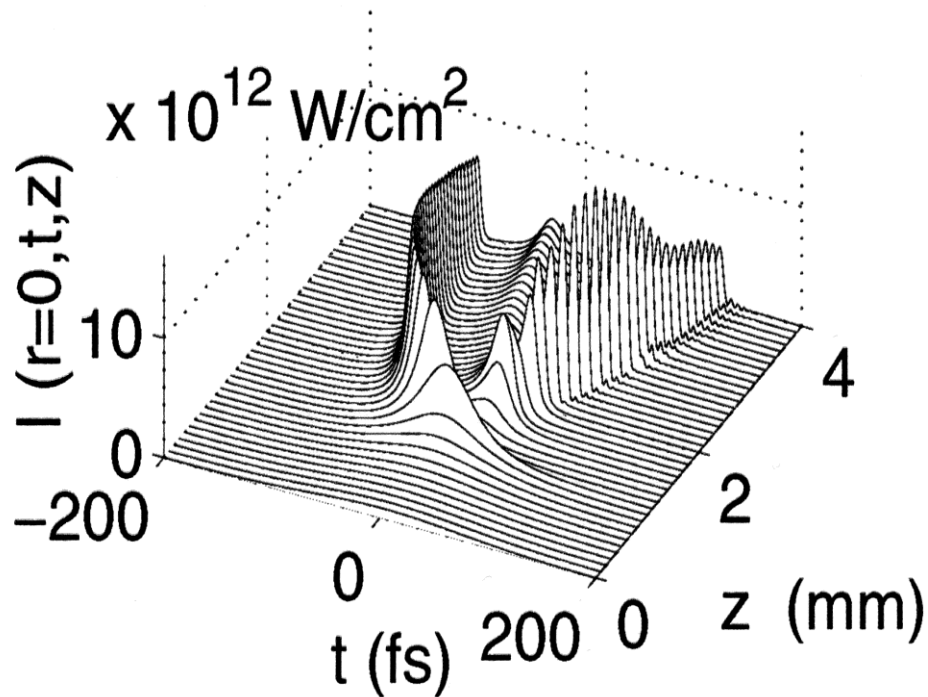
#### **2.3.4. Résultats numériques de la propagation dans le domaine temporel**

Le graphique 2.8 présente le comportement temporel d'une impulsion laser identique à celles de nos expériences.

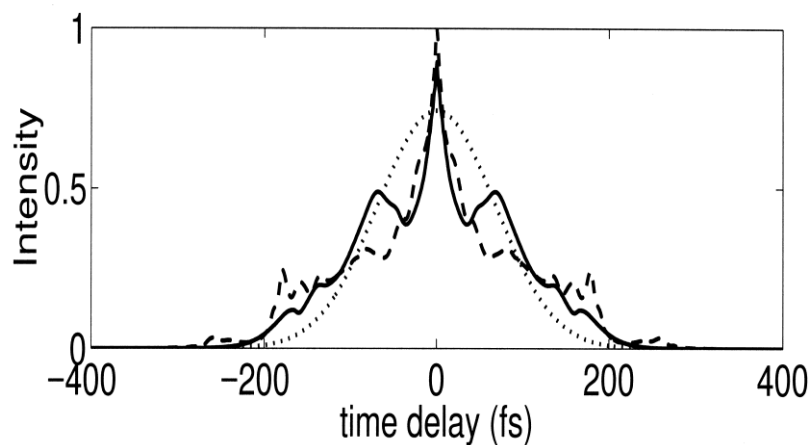
A l'entrée de l'échantillon, l'intensité laser est faible. Du fait de l'effet Kerr optique, l'impulsion s'auto-focalise et l'intensité locale augmente. Après 1.5 mm, l'impulsion se divise temporellement en 2 impulsions de durée plus courte. Il faut remarquer que l'avant de l'impulsion forme d'abord une impulsion alors que l'arrière reste faible. L'impulsion est alors dissymétrique. Les deux impulsions formées ont une durée de 60 fs et sont séparées de 120 fs.

Afin de pouvoir comparer les résultats numériques et les résultats expérimentaux, il est nécessaire de calculer l'autocorrélation de la double impulsion créée.

On retrouve alors sur la figure 2.9 la forme à trois pics de l'autocorrélation qui est très similaire aux courbes expérimentales.



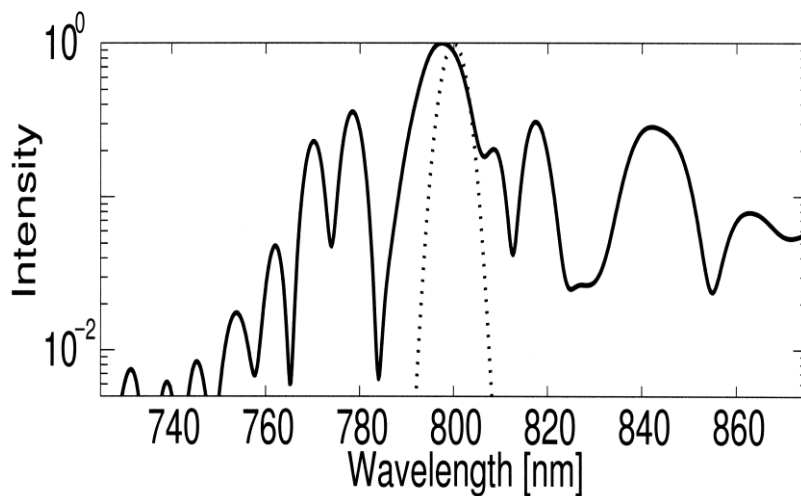
*Figure 2.8: Simulation numérique. Représentation du profil temporel du filament sur 4 mm de propagation dans la silice. Impulsion : 800 nm, 2  $\mu$ J, 160 fs. Onde plane à l'entrée de la silice avec un waist de 30  $\mu$ m.*



*Figure 2.9: Simulation numérique. Autocorrélation calculée de l'impulsion initiale (pointillés) et du filament après 2 mm (trait plein) et après 5 mm (tirets) de propagation dans la silice. Impulsion : 800 nm, 2  $\mu$ J, 160 fs. Onde plane à l'entrée de la silice avec un waist de 30  $\mu$ m.*

### 2.3.5. Résultats numériques de la propagation dans le domaine spectral

La figure 2.10 donne le spectre calculé d'une impulsion après propagation à travers 10 mm de silice fondue. On retrouve comme le montre l'expérience un fort élargissement spectral et des franges de 16 nm correspondant au spectre de deux impulsions de 60 fs espacées de 120 fs.



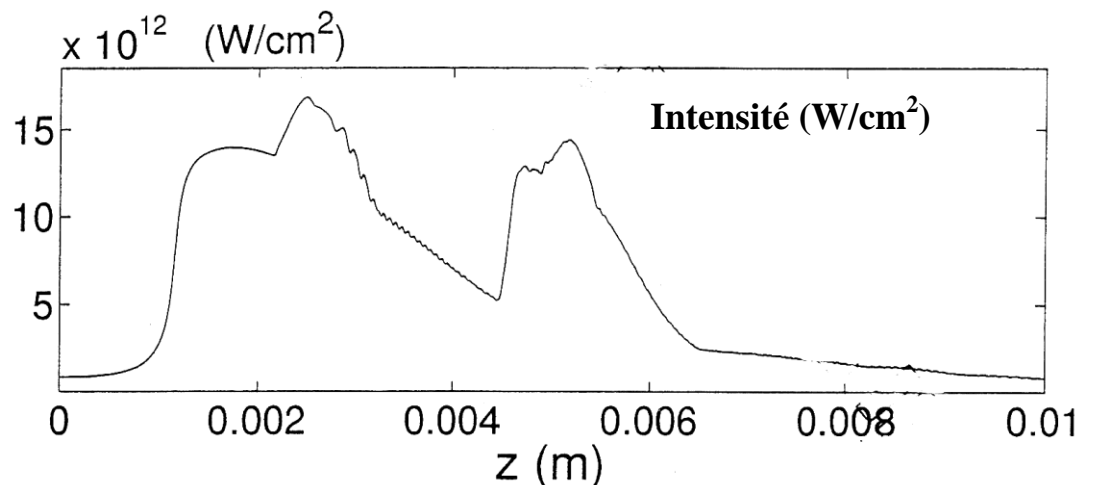
*Figure 2.10: Simulation numérique. Spectre calculé de l'impulsion initiale (pointillés) et du filament après 10 mm de propagation dans la silice (trait plein). Impulsion : 800 nm, 2  $\mu$ J, 160 fs. Onde plane à l'entrée de la silice avec un waist de 30  $\mu$ m.*

### 2.3.6. Intensité lumineuse et densité électronique le long de la propagation

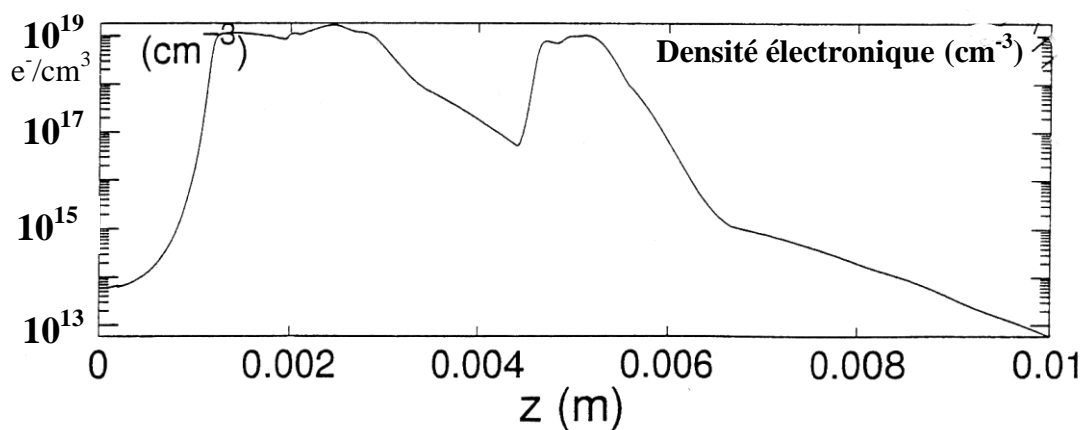
Les figures 2.11 et 2.12 donnent l'intensité lumineuse et la densité électronique le long de la propagation. A son maximum, l'intensité est de l'ordre de  $1.5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ . Elle est très importante uniquement sur les quelques millimètres qui correspondent à la zone de focalisation. Pour la suite de la propagation, l'intensité est plus faible ( $10^{12} \text{ W/cm}^2$ ).

La densité électronique sature vers  $10^{19} \text{ cm}^{-3}$ . Elle forme un plateau dû à l'équilibre entre l'autofocalisation par l'effet Kerr optique et la défocalisation du plasma. Nous verrons au chapitre 3 que les dommages irréversibles se forment pour des densités électroniques

supérieures à  $10^{20} \text{ cm}^{-3}$ . Il est donc normal que ce type de propagation filamentée sur plus d'un centimètre cause peu ou pas de dommages dans la silice. Il devient alors évident que le déclin du filament lorsque l'échantillon reste immobile provient d'un échauffement local dû au fort taux de répétition (200 kHz).



*Figure 2.11 : Simulations numériques : intensité lumineuse ( $\text{W}/\text{cm}^2$ ) au centre de l'impulsion le long du filament. Impulsion : 800 nm, 2  $\mu\text{J}$ , 160 fs. Onde plane à l'entrée de la silice avec un waist de 30  $\mu\text{m}$ .*



*Figure 2.12 : Simulations numériques : densité électronique ( $\text{cm}^{-3}$ ) le long de la propagation de l'impulsion. Impulsion : 800 nm, 2  $\mu\text{J}$ , 160 fs. Onde plane à l'entrée de la silice avec un waist de 30  $\mu\text{m}$ .*

### **2.3.7. Discussion des résultats**

Les résultats numériques sont en bon accord avec les enregistrements expérimentaux. Nous avons donc su faire le bon choix dans les paramètres introduits dans le code de propagation que nous avons donc pu valider. L'obtention et la caractérisation d'un filament de plusieurs millimètres de long dans un solide est une première. Le couplage entre les résultats expérimentaux et le code numérique permet une compréhension à l'échelle microscopique des nombreux phénomènes qui interviennent. Cela permet aussi de dégager leur importance relative. En effet, l'équation non-linéaire de Schrödinger étendue utilise de nombreux termes pour les simulations numériques. On peut alors se demander quels sont ceux dont le rôle est prédominant pour la formation de la filamentation observée.

Les interrogations principales portent sur le rôle joué par la dispersion de vitesse de groupe et l'ionisation multiphotonique sur la formation de deux sous-impulsions de durée temporelle inférieure à la durée initiale de l'impulsion. La dispersion de vitesse de groupe est en effet connue pour diviser l'impulsion en deux sous-impulsions symétriques [10, 11]. Cette cassure temporelle de l'impulsion a notamment été observé dans le BK7 et a été attribuée à la dispersion de vitesse de groupe [12-14] et cela malgré la génération de continuum suggérant une ionisation multiphotonique non négligeable [15].

Il est également intéressant de connaître l'importance du rôle de la focalisation spatio-temporelle et du raidissement de l'impulsion sur la propagation. Ces deux effets pourraient contribuer à l'asymétrie des deux impulsions formées par la dispersion de vitesse de groupe [16, 17] à l'image des résultats numériques obtenus lors de nos simulations de propagation dans la silice.



Pour répondre à ces questions, les termes impliqués ont été retirés à tour de rôle de l'équation.

Lorsqu'on annule l'effet de l'ionisation multiphotonique, le filament ne se forme pas puisque aucun plasma ne peut être créé. Par contre, si le terme pour la dispersion de vitesse de groupe est enlevé alors une filamentation proche de celle observée avec l'équation complète est prévue numériquement.

Lorsque l'on retire l'opérateur  $T$ , qui rend compte des variations d'enveloppes rapides ne pouvant entrer dans l'approximation de l'enveloppe lentement variable [18], les résultats numériques restent pratiquement inchangés. La focalisation spatio-temporelle et le raidissement des impulsions ont une contribution faible.

Il apparaît de façon évidente que la formation du filament observé expérimentalement est due principalement à une compétition entre l'effet Kerr responsable de l'auto-focalisation et l'ionisation multiphotonique alors que la dispersion de vitesse de groupe, la focalisation spatio-temporelle et le raidissement de l'impulsion jouent un rôle mineur.

Il reste cependant de nombreux phénomènes à étudier et à comprendre. Par exemple, il nous est apparu que la position du foyer par rapport à la face d'entrée de l'échantillon de silice est très critique pour obtenir expérimentalement un filament. Pour une impulsion de  $2 \mu\text{J}$ , la liberté de positionnement de l'échantillon le long de l'axe  $z$  afin d'obtenir une longue filamentation est seulement de  $\pm 10 \mu\text{m}$ . Cette précision nécessaire n'apparaît pas numériquement.

## **2.4. Etudes expérimentales complémentaires sur la propagation**

J'ai précisé au paragraphe précédent que la position du foyer par rapport à la face d'entrée de l'échantillon de silice est très critique pour induire une filamentation laser longue de plusieurs mm. De plus, avec les impulsions fournies par le laser Ti-Saphir régénératif de 2  $\mu\text{J}$  (800 nm, 160 fs, 200kHz) focalisées par la lentille de 82 mm, nous étions limités au niveau de l'énergie puisque en dessous de 1.5  $\mu\text{J}$  il devient difficile de produire une longue filamentation.

Nous avons alors choisi de réduire le taux de répétition du laser à 100 kHz afin qu'il puisse fournir des impulsions plus énergétiques de l'ordre de 3.1  $\mu\text{J}$ .

De plus, afin d'avoir une vue plus large de la filamentation dans les solides transparents, j'ai étudié la propagation impulsionnelle femtoseconde à travers deux autres matériaux : le quartz et un verre de fluorures type ZBLAN.

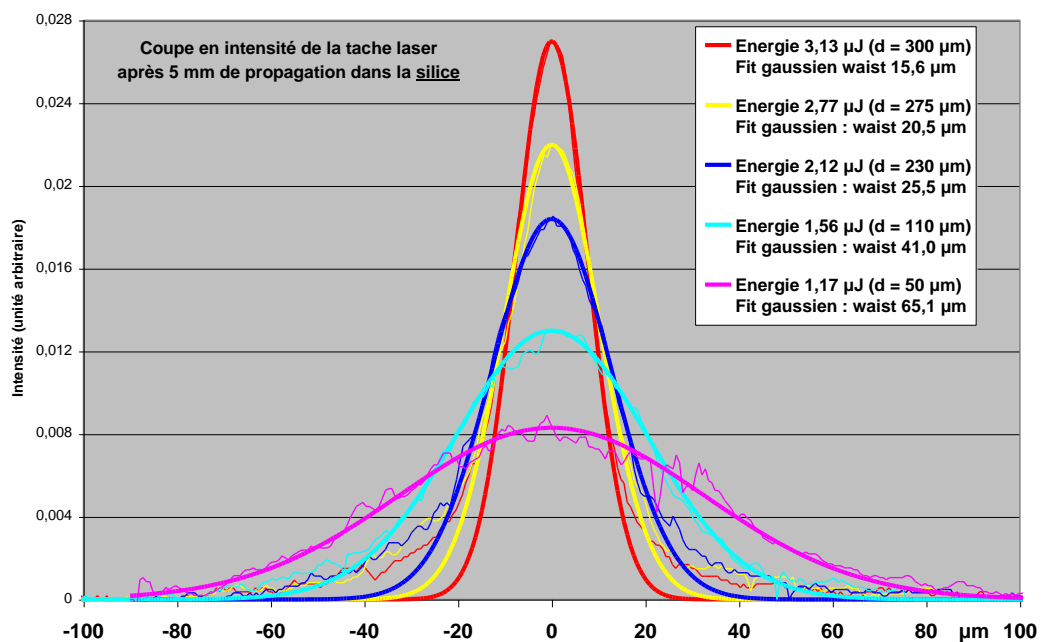
### **2.4.1. Filamentation en fonction de la position du foyer et de la puissance laser**

Un montage expérimental identique à celui du paragraphe 2.1.2. est utilisé pour étudier l'influence de la puissance laser sur la filamentation. L'étude est réalisée avec un échantillon de silice de 5 mm d'épaisseur. Les impulsions sont focalisées, comme lors de l'étude précédente, avec une lentille simple de focale  $f = 82$  mm. La tache laser en sortie d'échantillon est enregistrée sur une caméra CCD.

Le filament le plus intense après 5 mm de propagation, c'est-à-dire celui qui a le diamètre le plus petit est obtenu avec l'énergie maximum soit 3.13  $\mu\text{J}$  pour une distance entre le foyer et la face d'entrée de l'échantillon de  $300 \pm 100$   $\mu\text{m}$ . Il est important de noter qu'il est nécessaire de focaliser les impulsions dans l'air afin d'obtenir un bon filament dans la silice. On remarque que la plage pour obtenir un filament intense est

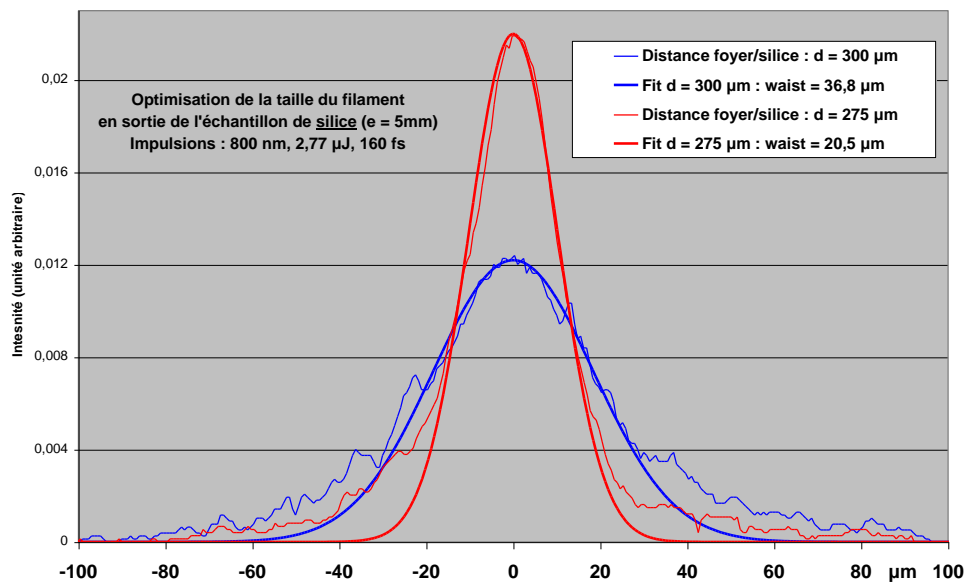
plus étendue qu'avec une impulsion de  $2\mu\text{J}$  pour laquelle on ne pouvait jouer que sur  $10\mu\text{m}$ . On constate également qu'il faut rapprocher l'échantillon de silice du foyer lorsque l'énergie diminue.

Le graphique de la figure 2.13 montre une coupe en intensité des taches lasers les plus étroites obtenues si l'on réduit l'énergie des impulsions. Lorsque l'énergie diminue, le diamètre du filament en sortie de l'échantillon de silice de  $5\text{ mm}$  augmente. Pour expliquer ce comportement on peut penser qu'avec une impulsion de  $1,5\mu\text{J}$ , la diffraction prend le pas sur l'effet Kerr plus tôt lors de la propagation qu'avec  $3\mu\text{J}$ . En d'autres termes, la longueur de la propagation autoguidée diminue lorsque l'énergie de l'impulsion diminue.

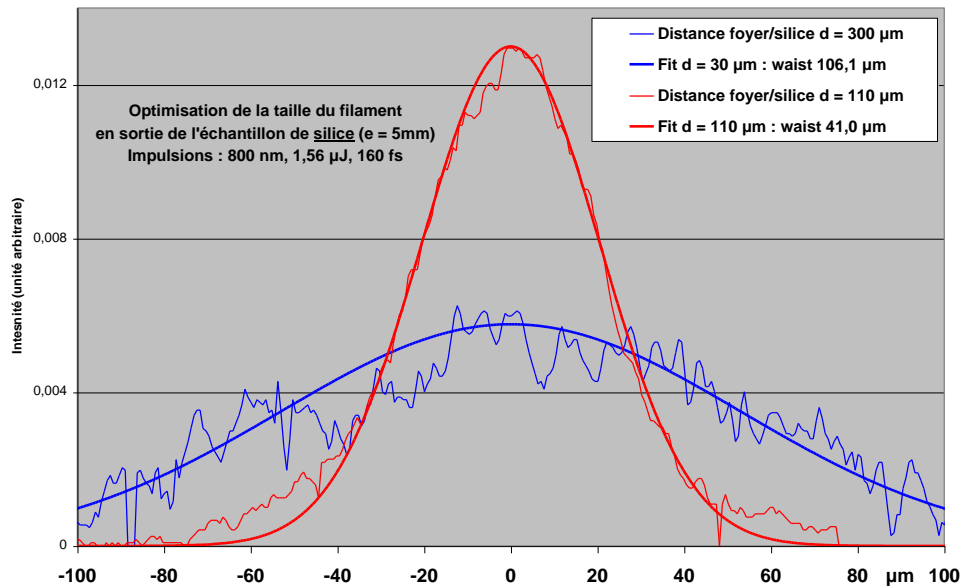


*Figure 2.13: Coupe en intensité de la tache laser après 5 mm de propagation dans la silice pour 5 énergies différentes :  $3.13\mu\text{J}$ ,  $2.77\mu\text{J}$ ,  $2.12\mu\text{J}$ ,  $1.56\mu\text{J}$  et  $1.17\mu\text{J}$ . Pour chaque énergie la distance "d" foyer/silice optimale pour avoir la tache la plus petite. Impulsion :  $800\text{ nm}$ ,  $160\text{ fs}$ ,  $100\text{ kHz}$ . Focalisation à l'entrée de la silice par une lentille  $f = 82\text{ mm}$ .*

Les graphiques des figures 2.14 et 2.15 présentent des coupes du faisceau laser pour des énergies par impulsion de 2.77 et 1.56  $\mu\text{J}$ . La coupe la plus étroite (rouge) correspond à celle du filament le plus intense obtenu en ajustant la position de la silice par rapport au foyer de la lentille. Le faisceau le plus large a été obtenu en laissant l'échantillon à la même position qu'avec des impulsions de 3.13  $\mu\text{J}$ . Cela confirme bien que si l'on réduit l'énergie par impulsion, il est nécessaire d'augmenter l'intensité en entrée d'échantillon en le rapprochant du foyer afin d'obtenir la meilleure filamentation.



**Figure 2.14:** Coupe en intensité de la tache laser après 5 mm de propagation dans la silice pour une énergie de 2.77  $\mu\text{J}$ . **Bleu** : filament obtenu pour une distance "d" foyer/silice de 300  $\mu\text{m}$ . **Rouge** : filament obtenu pour une distance "d" foyer/silice de 275  $\mu\text{m}$ . Impulsion : 800 nm, 160 fs, 100 kHz. Focalisation par une lentille  $f=82\text{ mm}$ .



*Figure 2.15: Coupe en intensité de la tache laser après 5 mm de propagation dans la silice pour une énergie de 1.56  $\mu\text{J}$ . Bleu : filament obtenu pour une distance "d" foyer/silice de 300  $\mu\text{m}$ . Rouge : filament obtenu pour une distance "d" foyer/silice de 110  $\mu\text{m}$ . Impulsion : 800 nm, 160 fs, 100 kHz. Focalisation par une lentille  $f=82$  mm.*

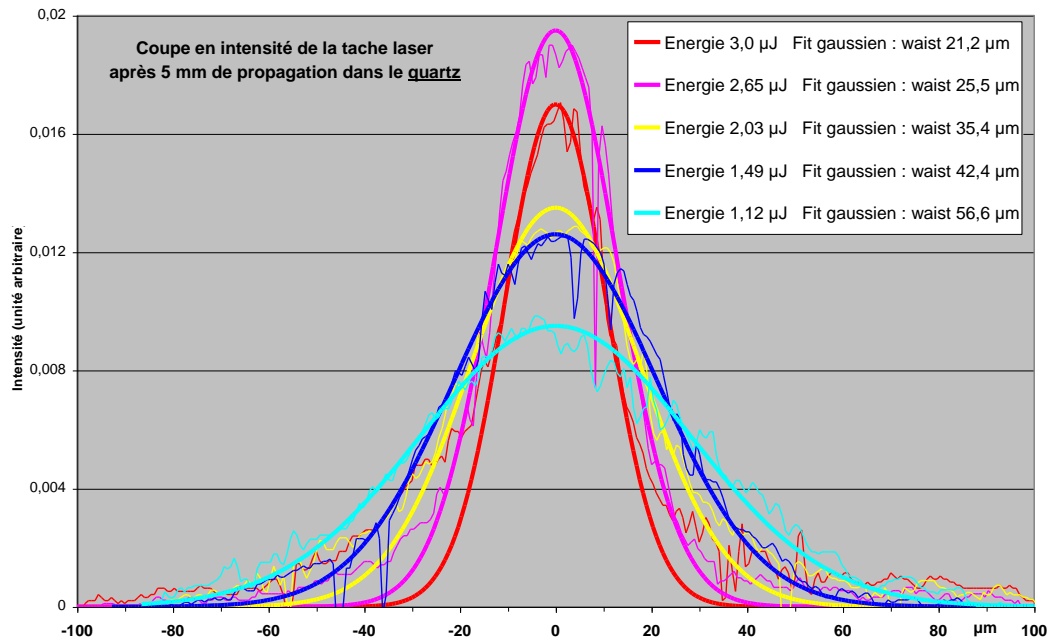
Il est intéressant de noter qu'un dispositif expérimental très similaire au nôtre a été utilisé par Cho et al. [19] pour former une propagation auto-guidée dans la silice. Ils focalisent également leurs impulsions (790 nm, 10  $\mu\text{J}$ , 110 fs) juste devant l'échantillon à l'aide d'une lentille de focale 6 cm. La taille transverse de leur filament est de 15 à 20  $\mu\text{m}$ . Cependant, ils n'ont pas caractérisé avec précision ce filament.

#### **2.4.2. Changement de milieu de propagation**

Le même type d'expériences que celles que je viens de décrire a été réalisé dans des échantillons de quartz et de ZBLAN . Afin de pouvoir aisément comparer les résultats avec ceux de la silice, l'épaisseur de ces nouveaux échantillons est également de 5 mm.

Les deux graphiques suivants (figures 2.16 et 2.17) montrent les taches laser les plus petites obtenues en fonction de l'énergie incidente après propagation à travers les

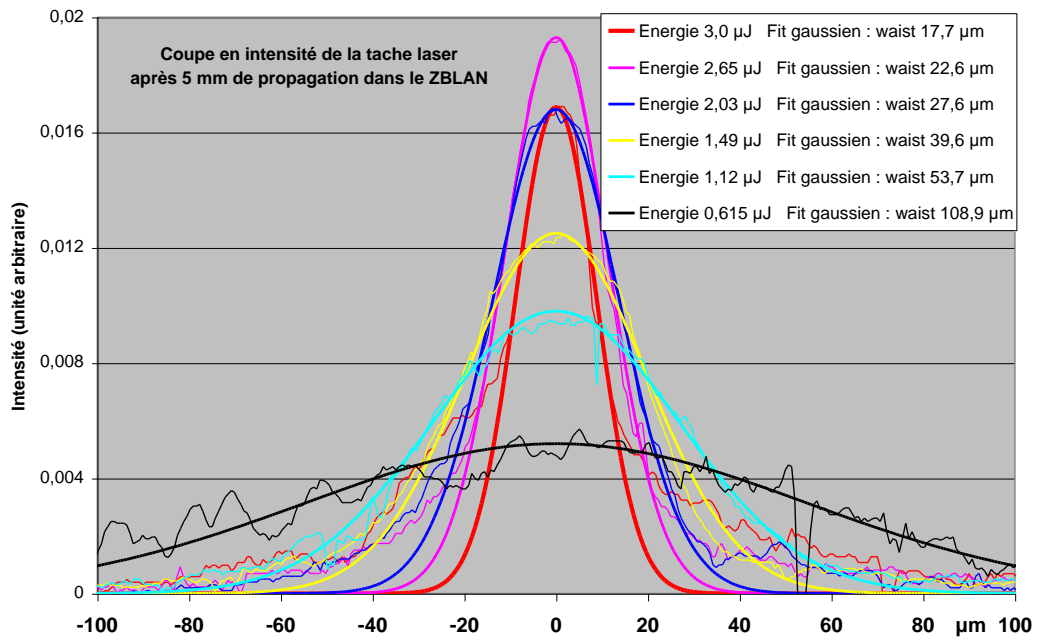
échantillons de quartz et de ZBLAN. Comme pour la propagation dans la silice, pour chaque énergie, il est nécessaire de réajuster la position de l'entrée de l'échantillon par rapport au foyer. On voit à nouveau que la finesse du filament en sortie d'échantillon diminue avec l'énergie.



*Figure 2.16:* Coupe en intensité de la tache laser après 5 mm de propagation dans le **quartz** pour 5 énergies différentes : 3.0 µJ, 2.65 µJ, 2.03 µJ, 1.49 µJ et 1.12 µJ. Impulsion : 800 nm, 160 fs, 100 kHz. Focalisation à l'entrée du quartz par une lentille  $f = 82$  mm.

On peut tout de même observer une différence entre le quartz et la silice. La tache de sortie du filament dans la silice à 3.13 µJ s'approche de la forme gaussienne alors que pour le quartz, il semblerait qu'un anneau commence à se former dès 5 mm de propagation.

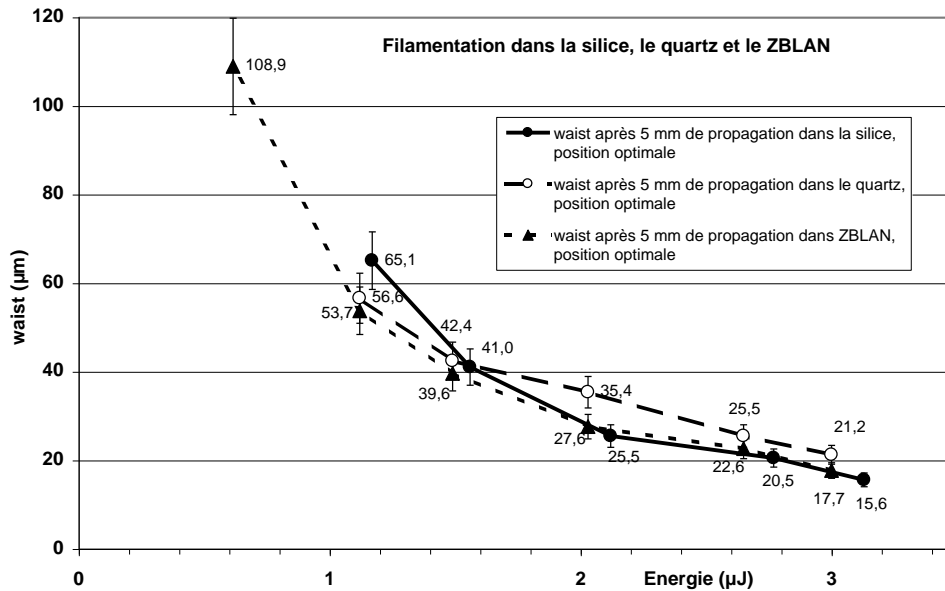
Cet anneau est également présent avec des impulsions de 3 µJ se propageant à travers l'échantillon de ZBLAN.



*Figure 2.17: Coupe en intensité de la tache laser après 5 mm de propagation dans le ZBLAN pour 6 énergies différentes : 3.0  $\mu\text{J}$ , 2.65  $\mu\text{J}$ , 2.03  $\mu\text{J}$ , 1.49  $\mu\text{J}$ , 1.12  $\mu\text{J}$  et 0.615  $\mu\text{J}$ . Impulsion : 800 nm, 160 fs, 100 kHz. Focalisation à l'entrée du ZBLAN par une lentille  $f=82$  mm.*

Le graphique de la figure 2.18 résume les résultats obtenus dans la silice, le quartz et le ZBLAN. La première observation est que la filamentation est possible dans ces trois échantillons et qu'au niveau spatial elle semble très semblable malgré leurs caractéristiques optiques variées et notamment malgré les différences au niveau de la bande interdite  $E_g$ . Celle du ZBLAN est de l'ordre de 6.5 eV et celle du quartz de l'ordre de 9 à 10 eV. A ce niveau de réflexion, il convient de noter que les 7.6 eV pris pour le  $E_g$  de la silice correspondent à une forte absorption et non à la bande interdite proprement dite. Les simulations numériques réalisées avec un gap de 9 eV donnent des résultats très proches de ceux montrés dans ce chapitre. Les simulations sont donc peu sensibles à la valeur du gap  $E_g$ . Cela confirme que la formation d'un filament est essentiellement due à l'équilibre entre l'autofocalisation du faisceau par l'effet Kerr optique et la défocalisation par le plasma. Comme l'entrée de l'échantillon est proche du foyer de la lentille, le front d'onde est pratiquement plan. Pour une telle géométrie peu

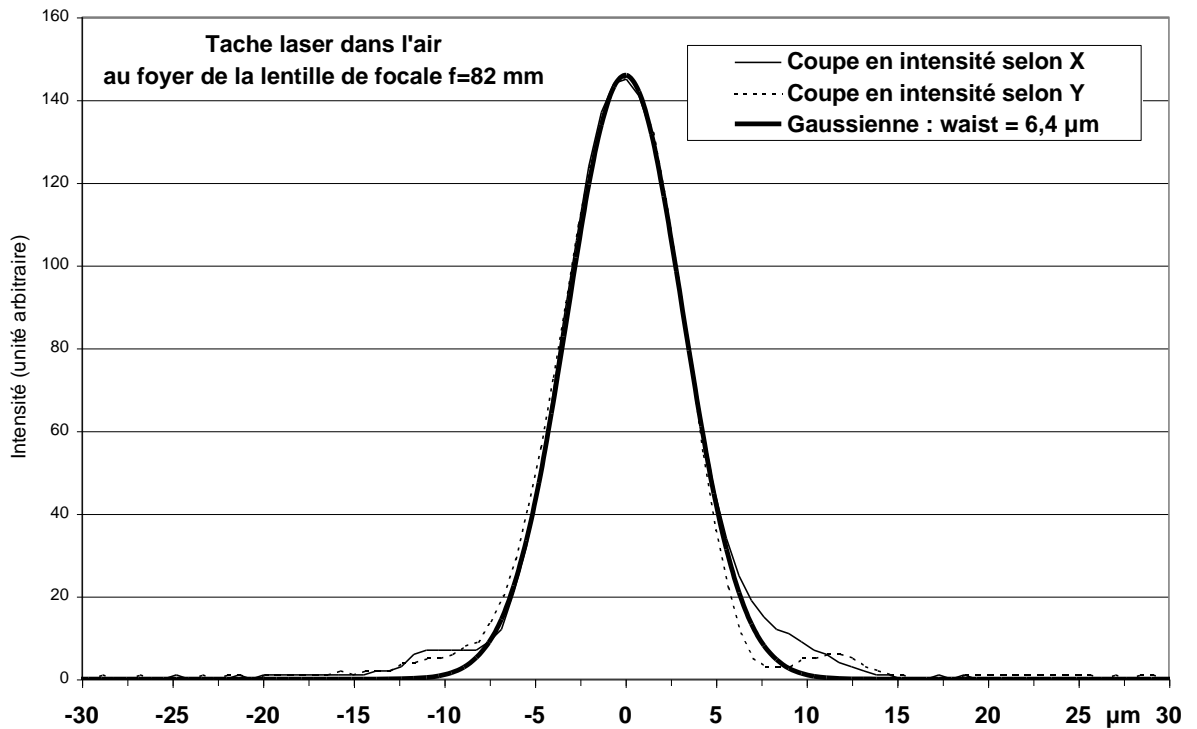
focalisante, le mode de production des électrons importe peu. Une fois que la densité électronique d'équilibre est atteinte, le filament est formé.



*Figure 2.18: Résumé des résultats expérimentaux sur la mesure de la taille du filament après 5 mm de propagation dans la silice (ronds pleins), le quartz (cercles) et le ZBLAN (triangles). Impulsions : 800 nm, 160 fs, 100 kHz. Énergie en abscisse. Focalisation à l'entrée de l'échantillon par une lentille  $f = 82$  mm.*

Il est intéressant de comparer la taille de la tache laser en propagation non-linéaire filamentaire par rapport à une propagation linéaire. Le spot laser au foyer de la lentille de focale 82 mm à faible flux est donné sur le graphique de la figure 2.19. Le waist au foyer de la lentille est de  $6.4 \mu\text{m}$ . Si ce faisceau se propageait de façon linéaire alors son waist serait de  $140 \mu\text{m}$  en sortie d'échantillon alors qu'avec une énergie de  $3 \mu\text{J}$ , la tache focale en sortie d'échantillon est de l'ordre de 15 à  $20 \mu\text{m}$ .





*Figure 2.19: Mesure expérimentale à basse énergie dans l'air de la taille de la tache laser au foyer de la lentille ( $f = 82$  mm).*

Une différence intéressante a cependant été observée entre la propagation dans le quartz et celle dans la silice. J'ai signalé précédemment que le filament est très rapidement instable et s'éteint après quelques secondes si la silice n'est pas déplacée en continu dans le plan (xy) perpendiculaire à l'axe laser z. Or si l'échantillon de quartz reste immobile, le filament intense reste stable pendant plusieurs minutes. La nature même de ces deux solides peut expliquer cette différence. Alors que la silice se présente sous une forme amorphe, le quartz lui est cristallin. Or les cristaux ont une meilleure conductivité thermique que les amorphes. Le quartz se refroidit plus vite que la silice entre deux impulsions. La température locale le long de la propagation laser augmente moins rapidement dans le quartz.

Cependant, la propagation non-linéaire des impulsions ultra-courtes étant complexe et faisant intervenir de nombreux phénomènes physiques, il reste difficile de donner avec certitude l'explication à cette différence de comportement sans études complémentaires.

Il conviendrait en outre d'étudier les caractéristiques optiques et physiques de chacun des deux matériaux.

Cette propagation avec peu ou pas d'endommagement dans la silice, le quartz et le ZBLAN est à rapprocher des expériences de D. von der Linde qui a observé une propagation non-linéaire sans endommagement d'impulsions de 1 mJ et 120 fs focalisées dans un verre grâce à une lentille de focale 6 cm [20]. Avec de telles conditions laser, un fort endommagement du matériau est attendu. Cependant, seuls des centres colorés dus à des absorptions multiphotoniques ont été observés. La concentration d'énergie optique nécessaire pour induire des dommages n'a donc pas été atteinte. Dans ce cas, l'auteur explique que la défocalisation du faisceau par le plasma créé reste supérieure à l'autofocalisation par l'effet Kerr optique. La défocalisation joue en effet un rôle majeur pour des densités électroniques bien en dessous de la densité critique donc en dessous du seuil d'endommagement par un plasma dense. D. von der Linde attribue ses observations aux fortes distorsions spatiales et temporelles dues aux processus non-linéaires liés à la propagation dans le verre. Nos expériences couplées aux simulations numériques ont permis de montrer le comportement spatial de l'impulsion qui se propage sous la forme d'un filament. Nous avons également bien établi expérimentalement et numériquement la cassure de l'impulsion principale en deux sous-impulsions d'une durée plus courte diminuant ainsi l'avalanche électronique qui conduit à un fort endommagement du matériau. Nos travaux rejoignent donc ceux de D. von der Linde sur la résistance au claquage optique des matériaux du fait de la propagation non-linéaire et des distorsions qui en découlent.

## Références bibliographiques

- [1] S. Henz and J. Herrmann, Phys. Rev. Lett. 86, 1003 (2001).
- [2] E. Baubeau, C. Le Blanc, F. Salin, Conference on Laser and Electro-Optics, 407 (1997).
- [3] I.G. Koprnikov, A. Suda, P. Wang, K. Midorikawa, Phys. Rev. Lett. 84, 3847 (2000).
- [4] J. Schjødt-Eriksen, J.V. Moloney, E.M. Wright, Q. Feng and P.L. Christiansen, Opt. Lett. 26, 78 (2001).
- [5] S. Tzortzakis, L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, A. Couairon and L. Bergé, Phys. Rev. Lett. 87, 213902 (2001).
- [6] A. Couairon and L. Bergé, Phys Plasmas 7, 193 (2000).
- [7] Documentation Heraeus Silice transparente et opaque.
- [8] P. Audebert, Ph. Daguzan, A. Dos Santos, J.C. Gauthier, J.P. Geindre, S. Guizard, G. Hamoniaux, K. Krastev, P. Martin, G. Petite and A. Antonetti, Phys. Rev. Lett. 73, 1990 (1994).
- [9] M. Mlejnek, E.M. Wright and J.V. Moloney, Opt. Lett. 23, 382 (1998).
- [10] P. Chernev and V. Petrov, Opt. Lett. 17, 172 (1992).
- [11] V. Tikhonenko, J. Christou and B. Luther-Davies, Phys. Rev. Lett. 76, 2698 (1996).
- [12] J.K. Ranka, R.W. Schirmer and A.L. Gaeta, Phys. Rev. Lett. 77, 3783 (1996).
- [13] S.A. Diddams, H.K. Eaton, A.A. Zozulya and T.S. Clement, Opt. Lett. 23, 379 (1998).
- [14] A.A. Zozulya, S.A. Diddams, A.V. Van Engen and T.S. Clement, Phys. Rev. Lett. 82, 1430 (1999).
- [15] A. Brodeur and S.L. Chin, J. Opt. Soc. Am. B 16, 637 (1999).

- [16] J.K. Ranka and A.L. Gaeta, *Opt. Lett.* 23, 534 (1998).
- [17] A.L. Gaeta, *Phys. Rev. Lett.* 84, 3582 (2000).
- [18] T. Brabec and F. Krausz, *Phys. Rev. Lett.* 78, 3282 (1997).
- [19] S.-H. Cho, H. Kumagai, K. Midorikawa, *Conference on Lasers and Electro-Optics CThM2*, 488 (2001).
- [20] D. von der Linde and H. Schüler, *J. Opt. Soc. Am. B* 13, 216 (1996).

## *Chapitre 3*

### ***ÉTUDE DE LA PROPAGATION DES IMPULSIONS***

#### ***DANS UN REGIME DE FORTE FOCALISATION***

Le chapitre précédent traite de la propagation d'impulsions laser femtosecondes peu focalisées conduisant à une longue filamentation laser. Ce chapitre concerne la propagation des mêmes impulsions mais fortement focalisées dans le matériau transparent. Dans ce cas, en se propageant les impulsions occasionnent des dégâts permanents dans le matériau. L'étude approfondie de ces dégâts fera l'objet du chapitre 4 mais nous fournit déjà quelques diagnostics dans ce chapitre. La trace de ces dégâts nous livre des informations sur la propagation des impulsions dans le milieu. Nous allons comparer les observations expérimentales avec le même code de propagation que nous avons décrit précédemment. Nous verrons que, là aussi, la propagation laser prend la forme d'un filament. De la comparaison des traces de dégâts et des calculs numériques nous obtiendrons des informations sur les conditions locales de l'impulsion et sur la densité du plasma créé au cours de sa propagation. Cependant, le code ne reproduit pas tous les résultats obtenus. Nous avons observé d'autres phénomènes que nous n'expliquons pas mais qui sont sans doute liés à des effets thermiques, effets dont le code ne tient pas compte.

Ce chapitre débute par une étude du déplacement des dégâts provoqués le long de l'axe de propagation du laser. Cette observation renseigne sur l'importance de l'autofocalisation du faisceau pompe incident. Des mesures de transmission des impulsions en fonction de l'énergie incidente sont ensuite présentées et comparées aux résultats du code de propagation. J'analyse par la suite les traces de dégâts permanents.

Les recoupements faits avec les résultats numériques vont permettre de remonter à la densité électronique correspondant au seuil d'endommagement permanent. Ce chapitre se termine par des mesures de type pompe-test qui permettent de suivre l'évolution temporelle de l'absorption par le plasma. Elles permettent de donner une valeur supérieure de la densité du plasma créé dans le milieu.

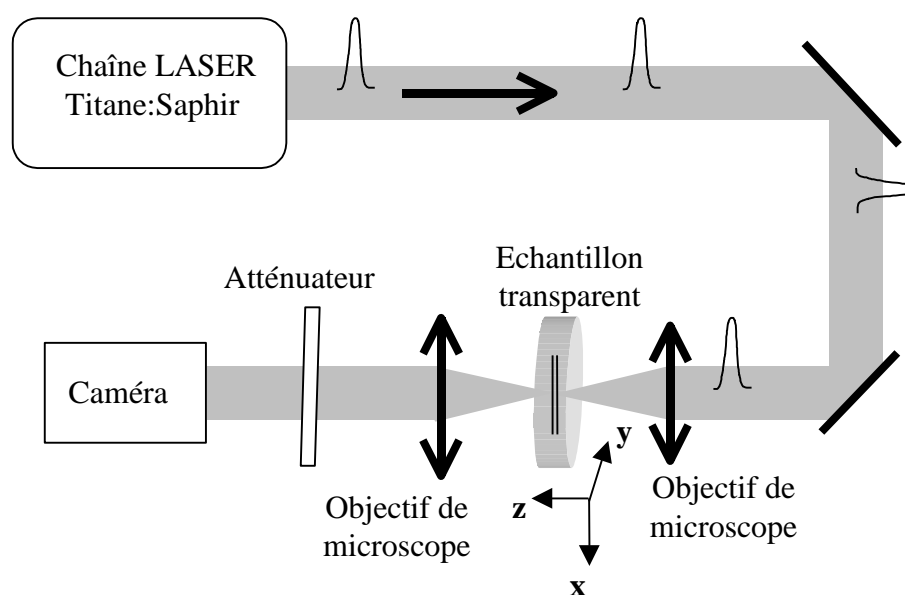
### **3.1. Ensemble expérimental**

Le montage expérimental est constitué d'un système de focalisation des impulsions, d'un ensemble motorisé et contrôlé par ordinateur pour positionner l'échantillon et d'un ensemble de contrôle avec une caméra de visualisation.

Nous utilisons deux types de sources laser. La première est la même que celle utilisée dans le chapitre précédent. Elle délivre des impulsions de longueur d'onde centrale 800 nm avec une largeur spectrale à mi-hauteur de 8 à 10 nm. Les impulsions de 2  $\mu$ J sont produites avec un taux de répétition de 200 kHz et une largeur temporelle à mi-hauteur de 160 fs. La deuxième source laser est une chaîne expérimentale développée au laboratoire. Il s'agit d'un laser Ti:saphir à dérive de fréquence composée d'un oscillateur, d'un amplificateur régénératif et de deux amplificateurs de puissance. Cette chaîne est capable de délivrer avec un taux de répétition de 1 kHz des impulsions centrées autour de la longueur d'onde 800 nm, d'énergie 7 mJ et de durée 50 fs.

Le faisceau laser est focalisé à l'intérieur de l'échantillon transparent. L'échantillon et l'objectif de focalisation sont placés sur des systèmes de précision micrométrique. La face d'entrée de l'échantillon est positionnée perpendiculairement à l'axe de propagation laser z. L'échantillon peut être déplacé selon les trois axes x, y et z grâce à trois moteurs pas-à-pas. La profondeur de focalisation du faisceau laser est contrôlée grâce à une caméra placée après l'échantillon. Afin de caractériser la propagation des impulsions,

une mesure de la puissance transmise ainsi qu'un système de détection synchrone pour les expériences pompe-sonde peuvent également être placés après l'échantillon. L'ensemble du système optique de précision sera décrit de façon détaillée au chapitre 4. Le schéma de la figure 3.1 donne une vue d'ensemble simplifiée du système optique utilisé.



*Figure 3.1: Vue d'ensemble du système optique expérimental.*

Il est important de bien préciser les conditions de focalisation, les éléments utilisés et leurs performances car la connaissance du profil spatial du foyer est un paramètre important. Le tableau de la figure 3.2 donne les caractéristiques de différents objectifs caractérisés. Le col ou waist au foyer de chaque objectif a été enregistré grâce à une caméra IR à l'aide d'un objectif de grandissement x40. Une coupe en intensité des images et la gaussienne correspondante sont données pour chaque objectif en annexe 3.

Le waist est défini comme le rayon à  $\frac{1}{e^2}$  du maximum de l'intensité.

Grandissement	Ouverture numérique	Waist au foyer dans l'air
X 2,5	0,07	4,81 $\mu\text{m}$
X 4	0,12	3,47 $\mu\text{m}$
X 10	0,25	1,84 $\mu\text{m}$
X 20	0,5	1,06 $\mu\text{m}$
X 40	0,65	0,71 $\mu\text{m}$

*Figure 3.2 : Caractéristiques des objectifs utilisés et mesure du col obtenu dans l'air à bas flux pour un faisceau laser à 800 nm.*

Grâce à des mesures d'auto-corrélation des impulsions, nous avons vérifié que la traversée des lentilles des objectifs ne modifie pas la durée des impulsions de 160 fs. Dans le cas où les impulsions deviendraient plus courtes que 10 à 20 femtosecondes ces objectifs par réflexion seraient inadéquats. Nous nous sommes munis d'un objectif par réflexion (x15; NA 0.50). Ses deux miroirs sont recouverts d'or afin d'optimiser la réflexion à 800 nm. Ce type d'objectif par réflexion ne modifie pas la durée des impulsions ultra-courtes. De plus, il possède l'avantage d'avoir une distance de travail de 23 mm qui est plus de 10 fois supérieure à celle d'un objectif d'ouverture numérique comparable. Enfin, la focalisation par réflexion doit permettre de focaliser des impulsions très énergétiques qui endommageraient des objectifs par réflexion. Grâce à sa distance de travail importante, il donne la possibilité de focaliser les impulsions très profondément à l'intérieur d'un matériau. S'il est utilisé comme reprise d'image, il peut permettre de suivre l'évolution spatiale du faisceau sur plusieurs centimètres. L'utilité d'un tel objectif est donc certaine. Malgré ses avantages, cet objectif n'a pas été utilisé dans nos expériences. Son emploi demande en effet un temps de prise en main du fait de la très grande précision nécessaire au niveau de son positionnement angulaire très critique pour obtenir une focalisation ou une image de bonne qualité.

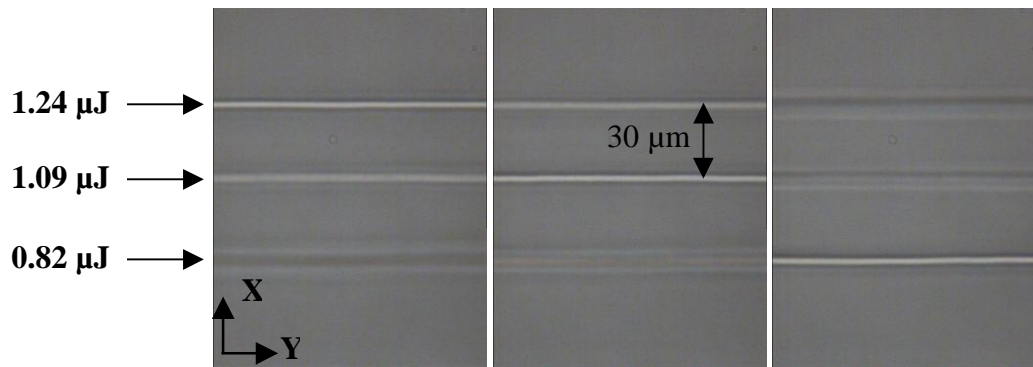


### **3.2. Autofocalisation par l'effet Kerr optique**

Il est difficile d'étudier l'évolution spatiale du faisceau au cours de sa propagation comme cela a été réalisé lors des expériences décrites au chapitre précédent. En effet, les taches focales de l'ordre de 1 à 2  $\mu\text{m}$  sont proches de la limite de diffraction et ne peuvent pas être résolues sur une profondeur de champ suffisante avec les objectifs dont nous disposons. Cependant, il est possible d'étudier a posteriori les modifications induites à l'intérieur du matériau par les impulsions femtosecondes.

Nous avons vu au chapitre 1 que lorsqu'une impulsion est suffisamment énergétique pour que sa puissance soit supérieure à la puissance critique  $P_c$  elle subit une autofocalisation spatiale due à l'effet Kerr optique. La distance de focalisation diminue lorsque la puissance laser augmente [1-3].

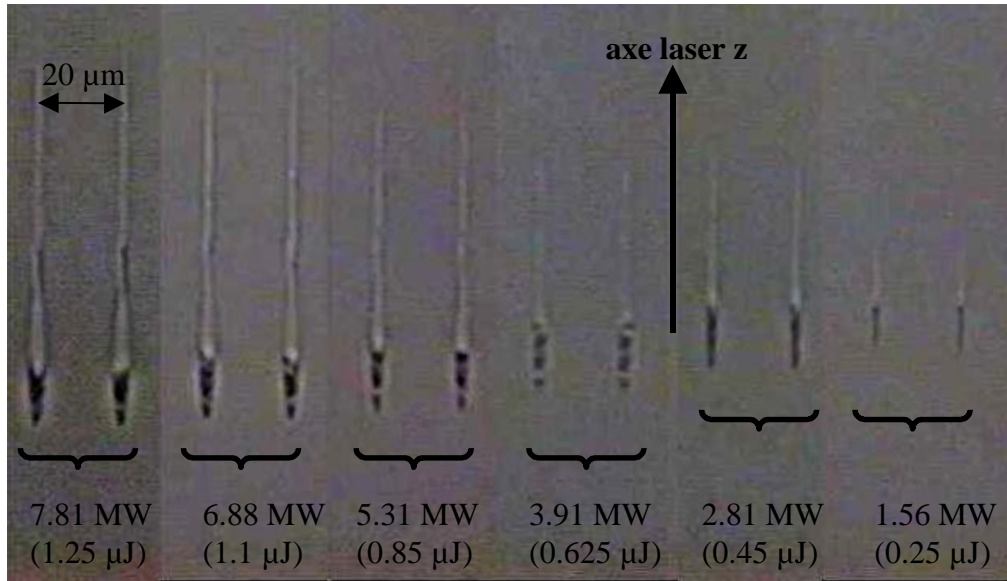
Une première indication de la dépendance de la position du foyer selon l'intensité du laser est donnée par la figure 3.3. Cette figure représente trois lignes de dégâts tracées dans le même échantillon qui se déplace de façon uniforme selon l'axe  $y$ . Ces lignes correspondent à trois puissances laser pour la même distance lentille-échantillon. Elles sont observées ultérieurement à l'aide d'un microscope optique de grandissement  $\times 50$  dans des plans perpendiculaires à  $z$ . On voit que la mise au point du microscope est différente pour chaque ligne. Les dommages induits dans l'échantillon se rapprochent de la source laser lorsque l'énergie augmente. Le déplacement entre les lignes inscrites avec des énergies de 1.24  $\mu\text{J}$  et 0.82  $\mu\text{J}$  est de l'ordre de 60  $\mu\text{m}$ . En admettant que la position des défauts correspond à une intensité maximale du faisceau, cette observation est le premier indice concernant le recul du point de focalisation laser.



*Figure 3.3 : Observation en microscopie optique (objectif x50) dans trois plans (xy) perpendiculaires à l'axe laser z. Conditions d'inscription des trois lignes : échantillon de silice (type Hérasil), vitesse de déplacement de l'échantillon 100  $\mu\text{m/s}$ , focalisation par un objectif (x2,5 ; NA 0.07) à 500  $\mu\text{m}$  sous la surface, laser (800 nm, 160 fs, 200 kHz), impulsions d'énergie 1.24  $\mu\text{J}$ , 1.09  $\mu\text{J}$  et 0.82  $\mu\text{J}$  pour chacune des trois lignes.*

Une mesure du recul des dommages permettrait de localiser le foyer non-linéaire et d'en déduire des informations sur la puissance critique et par conséquent sur l'indice non-linéaire de la silice. Une méthode précise consiste à observer selon l'axe z les dégâts obtenus dans un échantillon immobile pour des impulsions de différentes énergies incidentes. Ce type d'expérience a été réalisé dans la silice pour des durées d'impulsions variant de 0.7 à 4.2 ps [4] ainsi que pour des impulsions de 130 fs [5].

Les modifications de la figure 3.4 ont été induites en exposant la silice durant deux secondes sur des points fixes à des impulsions focalisées par l'objectif (x20 ; NA 0.50). L'énergie des impulsions de 160 fs varie de 1.25  $\mu\text{J}$  (7.8 MW) à 0.25  $\mu\text{J}$  (1.56 MW). On observe des traces de dégâts qui s'étendent sur une longueur allant jusqu'à 80  $\mu\text{m}$  et dont la tête remonte vers le laser lorsque l'énergie augmente.



*Figure 3.4 : Observation en microscopie optique de modifications induites dans la silice. Conditions d'exposition par point : objectif de focalisation (x20; NA 0.50), puissance et énergie indiquées sur l'image, temps d'exposition 2 s, durée impulsionnelle 160 fs, taux de répétition laser 200 kHz.*

Pour un faisceau convergent l'auto-focalisation conduit à un déplacement du point de focalisation laser  $d_f$  de la forme (voir annexe 4):

$$d_f = \frac{R^2}{R + Z_{NL}} \quad (3.1)$$

avec R le rayon de courbure exprimé par :

$$R = n_0 z \left( 1 + \left( \frac{Z_r}{z} \right)^2 \right)$$

et

$$Z_{NL} = Z_r \left( 1 + \left( \frac{z}{Z_r} \right)^2 \right) / \left( n_0 \sqrt{\frac{P}{P_c} - 1} \right)$$

et la distance de Rayleigh définie telle que :

$$Z_r = \frac{\pi w^2}{\lambda}$$

$\lambda$  est la longueur d'onde du laser dans le vide soit 800 nm; w est le waist du faisceau mesuré dans l'air;  $n_0 z$  est la distance de propagation dans l'échantillon et  $n_0$  est l'indice

de réfraction de la silice obtenue par fusion à la longueur d'onde centrale du laser 800 nm soit  $n_0 = 1.453$ .

$P_c$  est la puissance critique donnée par R.W. Boyd [1] :

$$P_c = \frac{\pi(0.61)^2 \lambda^2}{8n_0 n_2} \quad (3.2)$$

L'ouvrage de Boyd donne également la relation directe entre l'indice non-linéaire  $n_2$  en  $\text{cm}^2/\text{W}$  et la susceptibilité optique non-linéaire  $\chi^{(3)}$  souvent exprimée en unités électromagnétiques ou (esu).

$$n_2 (\text{cm}^2/\text{W}) = \frac{0.0395}{n_0^2} \chi^{(3)} (\text{esu}) = 3.75 \cdot 10^{-16} \text{cm}^2/\text{W} \quad (3.3)$$

Cela donne une valeur théorique de la puissance critique :  $P_c = 1.72 \text{ MW}$ .

A la figure 3.5, les déplacements mesurés de la tête des dommages sont superposés à la courbe donnée par l'expression (3.1). Le col du faisceau est pris comme paramètre ajustable. La puissance critique expérimentale  $P_c = 1.82 \text{ MW}$  est obtenue à réexprimant (3.1) sous la forme :

$$\left( \frac{d_f}{n_0^3 z^2 - n_0^2 z d_f} \right)^2 = \frac{A}{P_c} (P - P_c)$$

avec 
$$\sqrt{A} = \left( Z_r \left[ 1 + \left( \frac{z}{Z_r} \right)^2 \right] \right)^{-1}$$

Tracer les valeurs obtenues au second membre en fonction de  $P$  permet d'obtenir  $P_c$  pour  $d_f = 0$  (voir encart de la figure 3.5). La puissance critique expérimentale  $P_c = 1.82 \text{ MW}$  est proche de la valeur  $P_c = 1.72 \text{ MW}$  calculée en utilisant (3.2) et (3.3). La pente donne un col de  $0.92 \mu\text{m}$  proche de celui mesuré à l'aide de l'imagerie IR égal à  $1.06 \mu\text{m}$ .

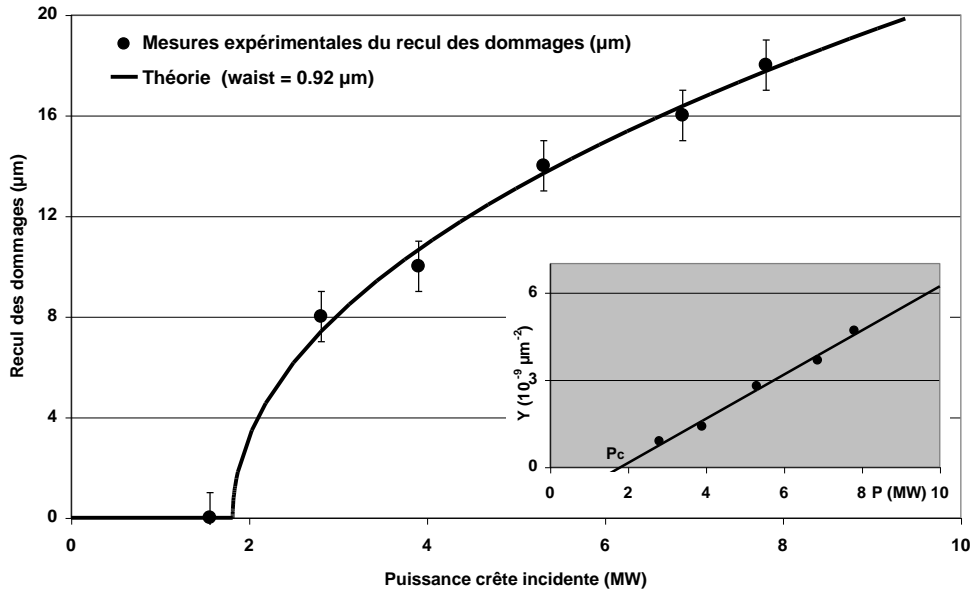


Figure 3.5 : Mesure du recul de la tête des dommages en fonction de la puissance crête laser et courbe du recul du foyer selon Marburger. Encart : représentation "linéaire" sous la forme  $[d_f \sim A(P-P_c)/P_c]$

De cette étude on déduit que la propagation des impulsions se comporte de la façon attendue jusqu'au lieu de formation d'un plasma.

Cependant, si l'approche de type Marburger [2] donne un résultat satisfaisant, elle peut être considérée comme trop simple car elle ne prend pas en compte la formation d'un plasma et les effets physiques qui lui sont liés. Il est donc intéressant de comparer ces mesures de recul à des simulations numériques qui donnent de nombreuses informations inaccessibles expérimentalement. Par exemple, les simulations numériques donnent la densité électronique, l'intensité et le flux lumineux tout au long de la propagation.

### **3.3. Etude de la transmission mono-impulsionnelle**

Une façon de confronter le code numérique avec des données expérimentales consiste à comparer les énergies transmises mesurées et calculées en fonction de l'énergie incidente des impulsions focalisées dans la silice.

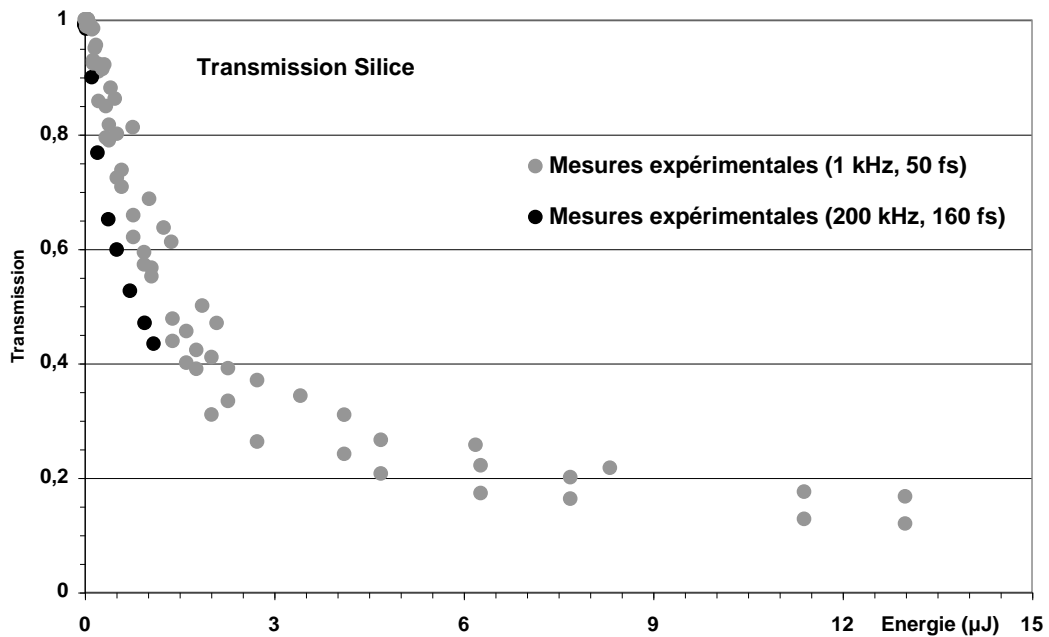
#### **3.3.1. Etude expérimentale de la transmission**

La mesure de la transmission en fonction de l'énergie incidente a été faite initialement avec le laser RegA décrit précédemment. Ce laser est bien adapté pour l'étude des dommages du fait de sa grande stabilité. Il est également idéal pour la réalisation d'éléments optiques enterrés tels que des réseaux de diffraction et des guides d'ondes, du fait de son taux de répétition élevé (50-250kHz) qui permet de travailler avec des vitesses intéressantes. Cependant, ne fournissant au maximum que quelques  $\mu\text{J}$ , il ne permet pas de réaliser une étude de transmission de l'énergie laser sur une gamme étendue. La seconde source laser Ti:saphir a donc été utilisée. Elle produit, avec un taux de répétition de 1 kHz, des impulsions de quelques mJ centrées autour de la longueur d'onde 800 nm et de durée 50 fs.

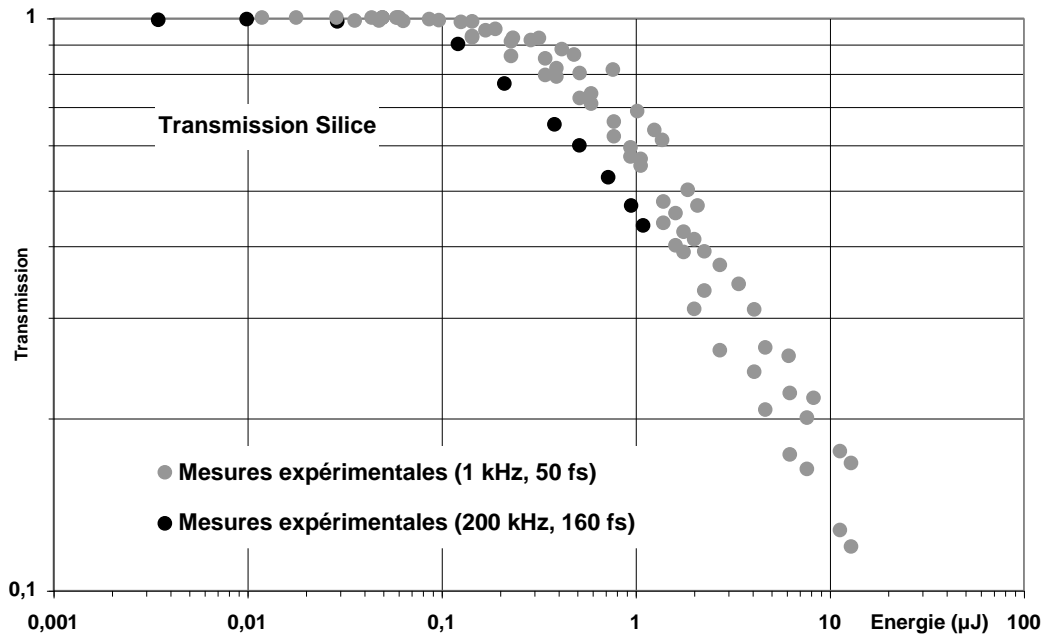
J'ai enregistré la transmission des impulsions focalisées par un objectif de microscope (x20; NA 0.50) à l'intérieur d'un échantillon de silice. Afin de collecter tout le faisceau transmis, une lentille d'ouverture numérique importante a été positionnée après l'échantillon (focale 2 cm et diamètre 2.8 cm soit une ouverture numérique  $\text{NA}=0.57$ ). Un wattmètre et une diode silicium ont été employés pour obtenir la transmission en fonction de l'énergie impulsionnelle incidente. Les résultats de ces deux techniques de

mesure de la puissance sont très voisins. Ils sont représentés sans distinction sur le graphique des figures 3.6 et 3.7 par un nuage de points.

L'atténuation du faisceau est considérable. Elle atteint presque 90% pour des impulsions de 10  $\mu\text{J}$ . La représentation linéaire permet de visualiser la chute rapide de la transmission lorsque l'énergie augmente puis la saturation qui s'amorce dès 2  $\mu\text{J}$ .



*Figure 3.6 : Représentation en échelle linéaire de la transmission impulsionnelle en fonction de l'énergie de l'impulsion. Transmission mesurée expérimentalement pour des impulsions de longueur d'onde centrale 800 nm, de 50 fs (1 kHz) en points gris ou de 160 fs (200 kHz) en points noirs. Focalisation dans la silice à l'aide d'un objectif (x20; NA 0.50).*



*Figure 3.7 : Représentation logarithmique de la transmission impulsionnelle en fonction de l'énergie de l'impulsion. Transmission mesurée expérimentalement pour des impulsions de longueur d'onde centrale 800 nm, de 50 fs (1 kHz) en points gris ou de 160 fs (200 kHz) en points noirs. Focalisation dans la silice à l'aide d'un objectif (x20; NA 0.50).*

### **3.3.2. Etude numérique de la transmission**

Le code numérique utilisé dans cette étude est identique à celui employé au chapitre 2. Nous avons cependant adapté les deux équations décrivant l'évolution de l'enveloppe du champ électrique et l'évolution de la densité électronique. Il faut en effet tenir compte de la forte focalisation qui devrait conduire à de hautes intensités. Il est donc nécessaire de remplacer le taux d'ionisation multiphotonique par un taux d'ionisation tiré de la formule générale de Keldysh [6]. En fait, cela se traduit, dans l'équation d'évolution du champ électrique, par la modification du terme d'absorption multiphotonique en un terme d'absorption par champ optique. Dans l'équation décrivant l'évolution de la densité électronique, le terme d'ionisation multiphotonique est remplacé par un terme d'ionisation par champ optique. Les opérateurs  $T$  et  $T^{-1}$  introduits au chapitre 1 sont des



termes correctifs. Les effets physiques qu'ils décrivent, respectivement l'auto-raïdissement de l'impulsion et les effets de focalisation spatio-temporelle jouent un rôle mineur. Nous ne les avons pas pris en compte dans les simulations.

Les deux équations utilisées s'écrivent alors sous la forme :

$$\frac{\partial \xi}{\partial Z} = \frac{i}{2k_0} \left( \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right) \xi - \frac{ik_0''}{2} \frac{\partial^2 \xi}{\partial \tau^2} - \frac{\sigma}{2} [1 + i\omega_0 \tau_c] \rho \xi + i \frac{k_0}{n_0} (n_2 I) \xi - \frac{E_g}{2} \frac{W_{Keldysh}}{I} \xi \quad (3.1)$$

$$\frac{d\rho(t)}{dt} = W_{Keldysh} + \alpha I(t)\rho(t) - \frac{\rho(t)}{\tau_{rec}} \quad (3.2)$$

Tous les termes présents dans ces deux équations d'évolution sont expliqués de façon détaillée au chapitre 1. Je rappelle donc brièvement le rôle de chacun d'eux.

$\frac{i}{2k_0} \left( \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right) \xi$  est le terme de diffraction dans le milieu d'indice  $n_0$  en coordonnées cylindriques.

$-\frac{ik_0''}{2} \frac{\partial^2 \xi}{\partial \tau^2}$  est le terme de dispersion de vitesse de groupe.

$-\frac{\sigma}{2} [1 + i\omega_0 \tau_c] \rho \xi$  représente l'influence du plasma d'électrons sur la propagation de l'onde.

$i \frac{k_0}{n_0} (n_2 I) \xi$  est le terme relatif à l'effet Kerr optique responsable de l'autofocalisation du faisceau laser.

$-\frac{E_g}{2} \frac{W_{Keldysh}}{I} \xi$  est le terme d'absorption par champ optique avec  $W_{Keldysh}$  le taux

d'ionisation donné par la formule de Keldysh [6].

$W_{Keldysh}$  dans l'équation d'évolution de la densité électronique est le terme d'ionisation par champ optique.

$[\alpha I(t)\rho(t)]$  est le terme relatif à la création d'électrons par avalanche électronique.

$\left[ -\frac{\rho(t)}{\tau_{rec}} \right]$  représente la décroissance exponentielle du plasma [7, 8].

La littérature restant approximative sur certains paramètres tels que le temps de collision  $\tau_c$  qui intervient dans la section efficace d'absorption plasma liée à l'effet d'avalanche, nous avons ajusté ce paramètre pour que la courbe de transmission calculée soit le plus proche possible de la courbe expérimentale. Nous avons essayé de respecter le seuil du début de perte de transmission ainsi que la pente.

Rappelons les paramètres et constantes utilisées dans ces deux équations couplées :

$\xi(r, t, z)$  est l'enveloppe complexe du champ électrique.

$\rho(t)$  est la densité d'électrons libres.

$\tau$  est la variable de temps retardée.

$$\tau = t - \frac{z}{V_g}$$

$V_g = \left[ \frac{d\omega}{dk} \right]_{\omega=\omega_0}$  est la vitesse de groupe du paquet d'onde à la fréquence de la porteuse

avec  $k_0$  est le nombre d'onde dans le milieu.

$$k_0 = k(\omega_0) = \frac{n(\omega_0)\omega_0}{c} = \frac{n_0\omega_0}{c}$$

$n_0 = n(\omega_0)$  est l'indice de réfraction du milieu pour la longueur d'onde centrale du rayonnement laser.

$$n_0 (\text{silice à } 800 \text{ nm}) = 1.453 \quad [9]$$

$E_g$  est la bande interdite du matériau.

$$E_g (\text{silice}) = 9 \text{ eV}$$

$\tau_{\text{rec}}$  est le temps caractéristique de recombinaison électronique.

$$\tau_{\text{rec}} = 150 \text{ fs} \quad [7, 8]$$

$k_0''$  est la dispersion de vitesse de groupe.

$$k_0'' = \left[ \frac{d^2 k}{d\omega^2} \right]_{\omega=\omega_0} = 361 \text{ fs}^2/\text{cm}$$

$n_2$  est l'indice de réfraction non-linéaire du milieu.

$$n_2 = 3.54 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$$

$\sigma$  est la section efficace de Bremsstrahlung inverse.

$$\sigma = \frac{k_0}{n_0^2 \rho_c} \frac{\omega_0 \omega_c}{(\omega_c^2 + \omega_0^2)} = \frac{k_0}{n_0^2 \rho_c} \frac{\omega_0 \tau_c}{(1 + \omega_0^2 \tau_c^2)} = 3.258 \cdot 10^{-18} \text{ cm}^2$$

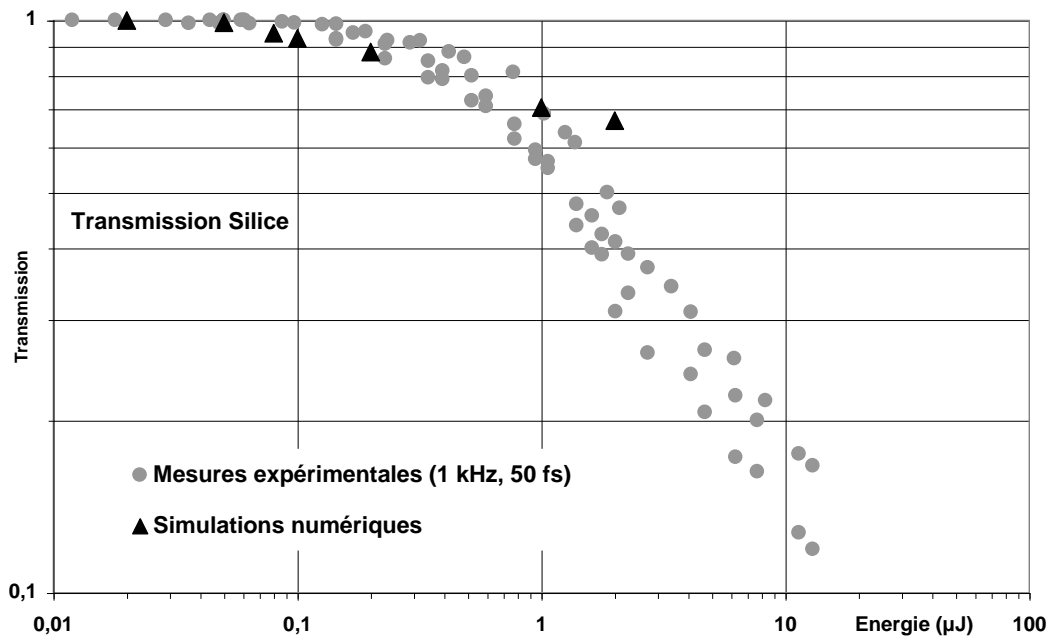
$\tau_c$  est le temps caractéristique de collision.

$$\tau_c = \frac{1}{\omega_c} = 8.5 \cdot 10^{-15} \text{ s}$$

La focalisation intervient par l'introduction de la taille du col appelé aussi "waist" mesuré dans l'air pour un faisceau de faible intensité. Dans le cas de l'objectif que j'ai utilisé (x20; NA 0.50), le col a été mesuré à 1.06  $\mu\text{m}$ . Les résultats numériques sur la transmission pour des impulsions de 50 fs focalisées par un objectif de microscope (x20; NA 0.50) sont donnés par les triangles noirs sur la figure 3.8.

La comparaison entre les valeurs de transmission mesurées et calculées par le code montre que le début de l'absorption est bien reproduite jusqu'à des valeurs de l'énergie de l'ordre de 1  $\mu\text{J}$ . Nous verrons au chapitre 4 que cette région correspond à l'apparition de dommages irréversibles. Cependant, à plus haute énergie, les simulations sont en désaccord avec les expériences. Les transmissions calculées sont supérieures à celles

mesurées. Il existe donc un mécanisme d'atténuation supplémentaire dont le code ne tient pas compte.



*Figure 3.8 : Représentation logarithmique de la transmission impulsionnelle en fonction de l'énergie de l'impulsion. Points gris : transmission mesurée expérimentalement. Triangles noirs : transmission calculée. Longueur d'onde centrale 800 nm. Durée impulsion 50 fs. Focalisation dans la silice à l'aide d'un objectif (x20; NA 0.50).*

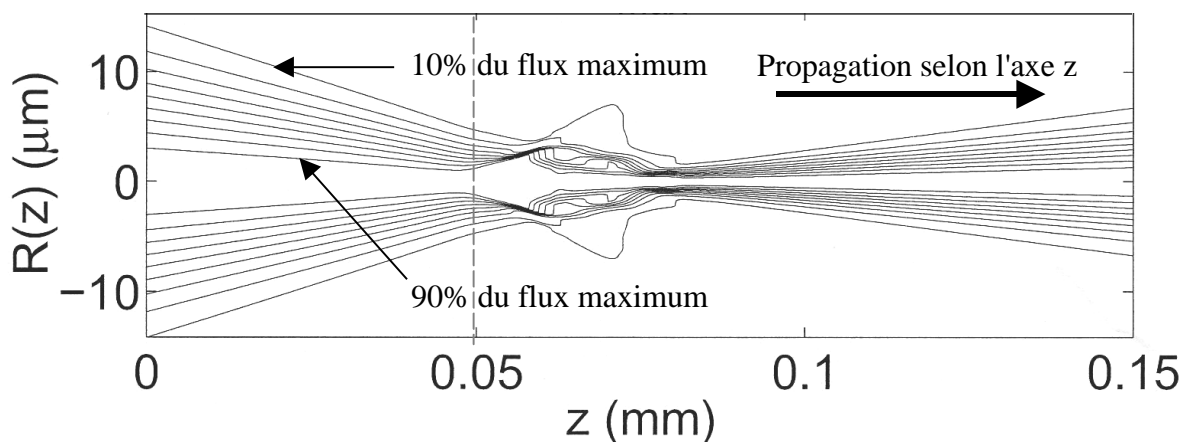
La valeur du temps de collision  $\tau_c$  dans la littérature variant de  $10^{-14}$  à  $10^{-15}$  s, nous avons étudié son influence sur la transmission donnée par le code de propagation. Ce paramètre influe de façon très importante sur la transmission qui passe de l'ordre de 30% pour  $\tau_c = 10^{-15}$  s à un peu plus de 70% pour  $\tau_c = 10^{-14}$  s pour une impulsion de 1  $\mu$ J focalisée par un objectif (x20; NA 0.50) dans la silice. En comparant les transmissions issues des simulations numériques à la courbe de transmission expérimentale, il nous est apparu que la valeur à donner à  $\tau_c$  est plus proche de  $10^{-14}$  s que de  $10^{-15}$  s. Comme indiqué plus haut, nous avons utilisé  $8.5 \cdot 10^{-15}$  s dans toutes nos simulations numériques. L'analyse des pertes de l'impulsion au paragraphe suivant confirmera le rôle majeur joué par l'effet d'avalanche et donc par le temps de collision  $\tau_c$  sur l'absorption.

### 3.4. Etude détaillée des résultats numériques et comparaison avec l'expérience

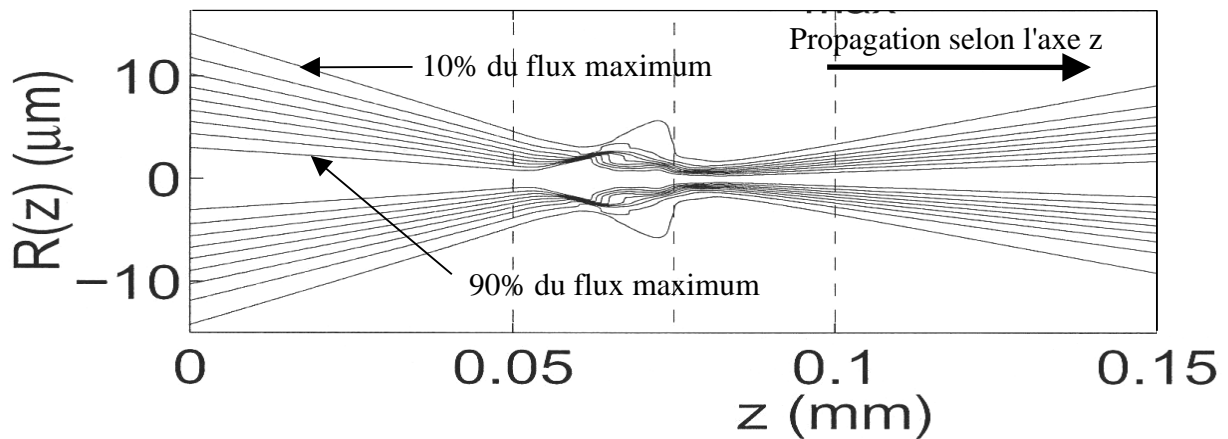
Nous avons obtenu les paramètres à introduire dans le code de propagation en ajustant les résultats numériques sur la courbe de transmission. Nous pouvons maintenant analyser dans le détail l'ensemble des données numériques et les comparer avec des résultats expérimentaux lorsque c'est possible.

Les figures 3.9 et 3.10 donnent le flux lumineux c'est-à-dire une énergie par unité de surface le long de la propagation de l'impulsion laser focalisée dans la silice pour deux énergies incidentes différentes : 1.1  $\mu\text{J}$  et 0.725  $\mu\text{J}$ . Cette représentation permet d'avoir une bonne vision du comportement du faisceau laser le long de sa propagation.

Pour les deux énergies représentées, on voit la focalisation du faisceau puis sa défocalisation à cause du plasma créé. On remarque que l'angle d'ouverture du faisceau diminue après la création du plasma. Ce changement d'ouverture est bien visible avec une énergie de 1.1  $\mu\text{J}$  pour laquelle le faisceau de lumière se propage après le foyer non-linéaire avec un angle de diffraction faible. On peut donc dire que le code de propagation prédit une filamentation laser malgré la forte focalisation à laquelle sont soumises les impulsions.



*Figure 3.9 : Simulation numérique : flux lumineux le long de la propagation. Les lignes représentent les courbes de niveau de 10 à 90% du flux maximal. Impulsion : 800 nm, 1.1  $\mu\text{J}$ , 160 fs. Focalisation (x20; NA 0.50).*



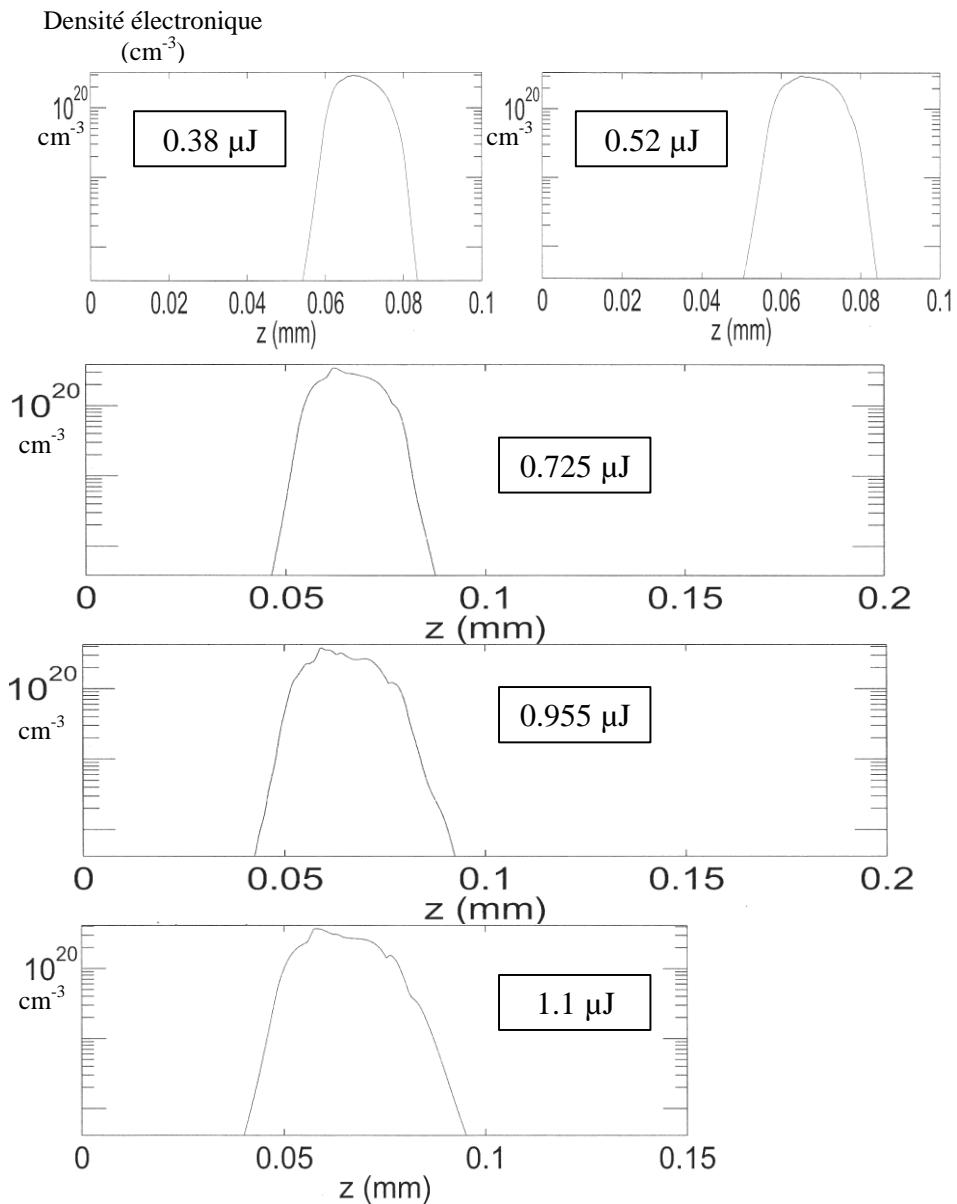
*Figure 3.10 : Simulation numérique : flux lumineux le long de la propagation. Les lignes représentent les courbes de niveau de 10 à 90% du flux maximal. Impulsion : 800 nm, 0.725  $\mu$ J, 160 fs. Focalisation ( $\times 20$ ; NA 0.50).*

On observe également que la défocalisation avec une impulsion de 1.1  $\mu$ J a lieu avant la défocalisation avec 0.725  $\mu$ J. Le plasma créé par l'impulsion de 1.1  $\mu$ J se forme donc avant celui créé par l'impulsion de 0.725  $\mu$ J. Si l'on attribue la formation d'un plasma à l'apparition de dommages irréversibles cette observation est en accord avec le recul des dommages étudié au paragraphe 3.2. Il faut cependant remarquer que, même si le modèle de Marburger [2] paraît bien traduire le déplacement de la tête des défauts, il ne correspond pas à la réalité. Il apparaît en effet clairement que la notion de foyer perd son sens du fait de la propagation de l'impulsion sous forme filamentée.

Le code permet d'obtenir également la densité électronique. La figure 3.11 montre la densité électronique au centre de la propagation ( $r = 0$ ) pour 5 énergies différentes : 1.1  $\mu$ J, 0.955  $\mu$ J, 0.725  $\mu$ J, 0.52  $\mu$ J et 0.38  $\mu$ J.

Pour ces cinq énergies introduites dans le code de propagation numérique, la densité électronique maximale reste comprise entre  $3 \cdot 10^{20}$  et  $4 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ . On observe également une forte saturation de ces densités électroniques. Cela est dû à la défocalisation du faisceau laser par le plasma qui ne permet pas d'atteindre des intensités lumineuses

suffisantes pour avoir des densités électroniques supérieures à  $4.10^{20} \text{ cm}^{-3}$ . Avec les impulsions que nous focalisons (800 nm, 1  $\mu\text{J}$ , 160 fs, objectif (x20; NA 0.50)) dans la silice, l'équilibre entre l'effet Kerr optique et la défocalisation plasma a donc lieu donc pour une densité électronique de l'ordre de 3 à  $4.10^{20} \text{ cm}^{-3}$ .



*Figure 3.11 : Simulations numériques : densité électronique au centre de l'impulsion le long de la propagation. Focalisation (x20; NA 0.50). Impulsions : 800 nm, 160 fs. Energie indiquée sur chaque représentation. De haut en bas : 0.38  $\mu\text{J}$ , 0.52  $\mu\text{J}$ , 0.725  $\mu\text{J}$ , 0.955  $\mu\text{J}$  et 1.1  $\mu\text{J}$ .*

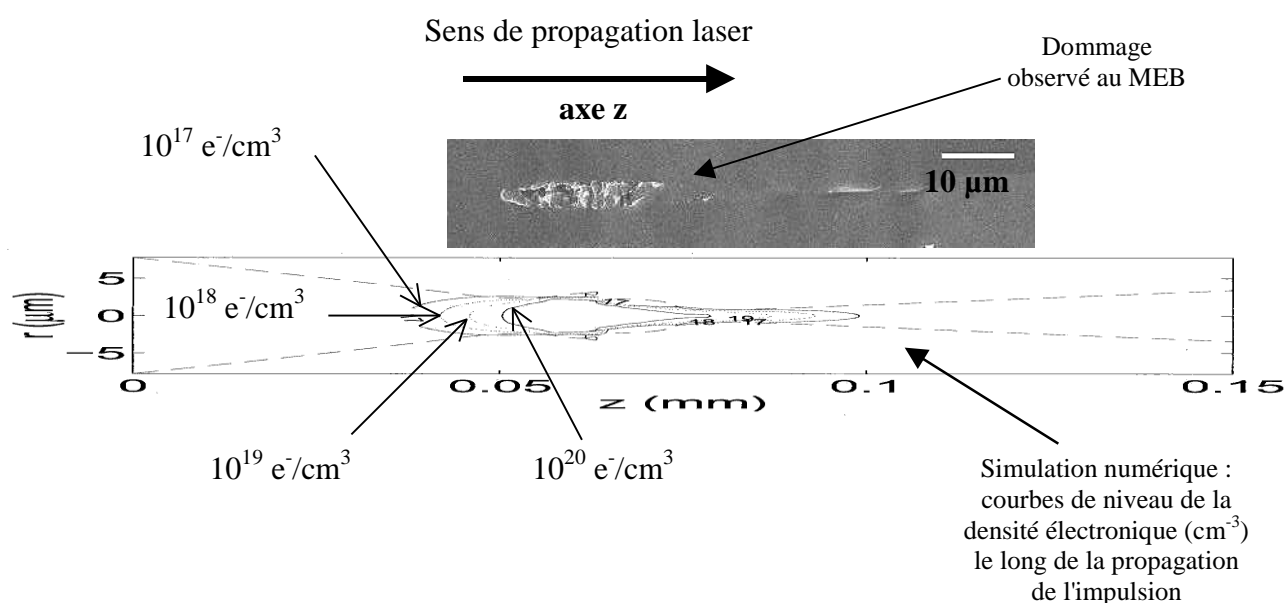
Nous avons voulu savoir à quelle densité électronique correspond l'apparition des dommages dans la silice. Pour cela, le recul de chaque densité électronique sur une gamme allant de  $10^{19}$  à  $4.10^{20} \text{ cm}^{-3}$  a été examiné et comparé au recul observé expérimentalement. La densité électronique pour laquelle le recul correspond à nos mesures expérimentales est de l'ordre de  $1$  à  $2 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ . Après cette première étude numérique, nous pouvons alors dire que les dommages se forment lorsqu'une densité électronique de l'ordre de  $1$  à  $2 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  est atteinte.

Si cette condition sur la densité électronique pour l'apparition des dommages est juste, la courbe de contour correspondante doit donner les dimensions latérale et longitudinale des dégâts. Pour faire une comparaison, il est nécessaire d'améliorer la résolution des images des défauts. Pour cela nous avons utilisé le microscope électronique à balayage (MEB) de l'Unité de Mécanique (UME) installée dans les locaux de l'ENSTA à Palaiseau.

La microscopie électronique à balayage est basée sur le bombardement de la surface de l'échantillon par un faisceau d'électrons. Les électrons secondaires réémis par le matériau sont collectés pour donner une image de la surface. Le spot du canon à électron très fin qui balaie la surface à imager permet d'observer des détails inférieurs à  $10 \text{ nm}$ . Pour étudier la très petite taille transverse des dommages induits par le faisceau laser, nous avons exposé une lame mince de silice de  $500 \mu\text{m}$  d'épaisseur afin de pouvoir réaliser aisément un clivage. Des lignes parallèles de plusieurs millimètres de long ont été inscrites à une profondeur de  $250 \mu\text{m}$ . Le clivage a été réalisé perpendiculairement à ces lignes. Pour que l'imagerie soit possible il est nécessaire que le matériau bombardé soit conducteur pour l'évacuation des charges qui pourraient rendre instable le faisceau d'électrons au niveau de la surface. La silice étant un isolant, les tranches de l'échantillon clivé ont donc été recouvertes d'un film d'or très mince déposé par évaporation thermique.



La figure 3.12 montre en parallèle une image d'un dommage induit dans la silice et les courbes de niveau de la densité électronique issues du code de propagation. Le dommage est constitué de deux parties distinctes. Il y a d'abord une première zone très fracturée de quelques microns de large et de quelques dizaines de microns de long. On distingue à la suite de ce premier gros dégât un second dommage très étroit de l'ordre de 200 à 300 nm que je nommerai la "queue" du dommage optique.



*Figure 3.12* : Comparaison entre les résultats expérimentaux et les simulations numériques. Haut : Image réalisée au microscope électronique à balayage après clivage d'un dommage induit par focalisation d'impulsions dans la silice (800 nm, 1 μJ, 160 fs, 200 kHz). Objectif (x20; NA 0.50). Bas : Simulation numérique : courbes de niveau de la densité électronique calculée par le code de propagation. Paramètres numériques identiques à l'expérience.

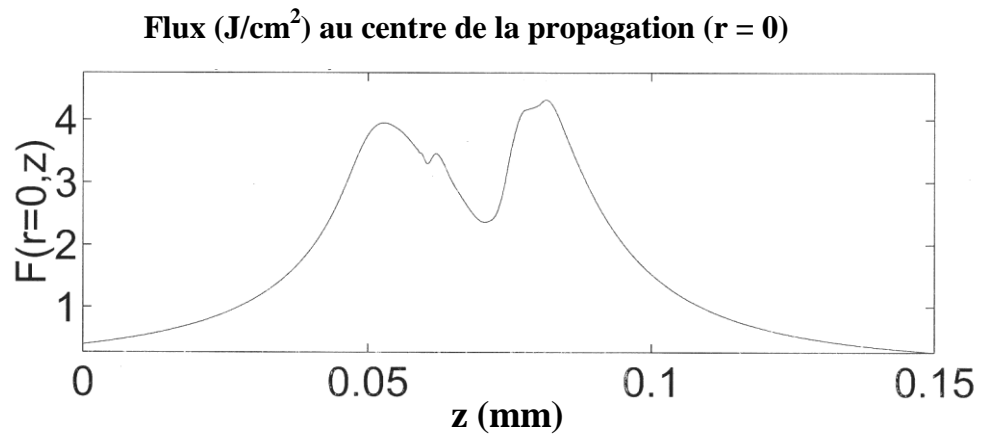
La même échelle spatiale est appliquée à l'image et à la représentation de la densité électronique le long de la propagation. Il est alors aisé de comparer les dimensions transverses et longitudinales du dommage principal à celles du plasma créé. La taille du plasma dont la densité est supérieure ou égale à  $10^{20} \text{ cm}^{-3}$  est très proche de la taille du dommage :

- Taille transverse du dommage principal =  $3.7 \pm 0.5 \mu\text{m}$
- Taille longitudinale du dommage principal =  $25 \pm 4 \mu\text{m}$
- Taille transverse du plasma de densité supérieure à  $10^{20} \text{ cm}^{-3}$  =  $4.3 \pm 0.5 \mu\text{m}$
- Taille longitudinale du plasma de densité supérieure à  $10^{20} \text{ cm}^{-3}$  =  $28 \pm 1 \mu\text{m}$

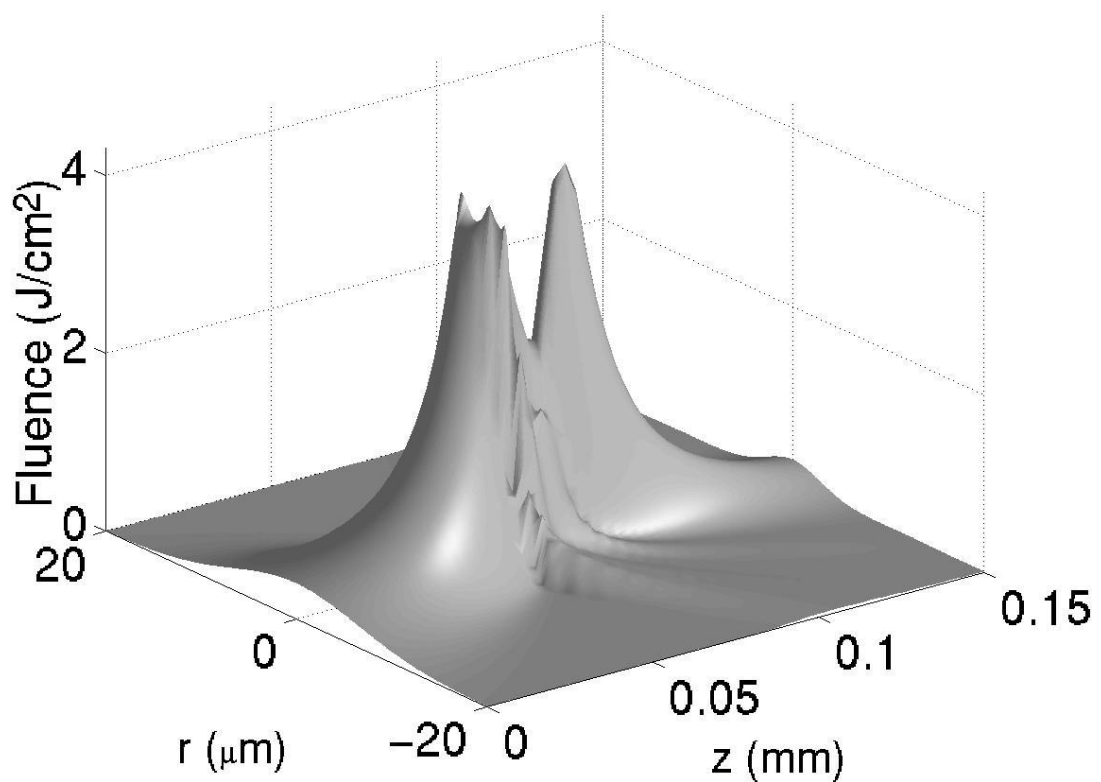
La taille du plasma de densité électronique supérieure à  $10^{20} \text{ cm}^{-3}$  reproduit donc bien la taille des dégâts induits au niveau de la première zone d'endommagement. Par contre, la queue très étroite des dommages observée au microscope électronique à balayage ne trouve pas de correspondance au niveau des courbes d'iso-densité données par la simulation numérique.

Cependant, les mesures de transmission permettent de déduire que la puissance est supérieure à la puissance critique après la première zone de dommage. On s'attend donc à une refocalisation du faisceau. Ce second dommage bien séparé du premier est donc à rapprocher d'une éventuelle seconde refocalisation que le code de propagation ne simule pas. La formation d'un nouveau foyer non-linéaire serait accompagné d'un dépôt d'énergie. Cette hypothèse pourrait expliquer la différence entre les résultats numériques et les expériences pour des énergies supérieures à  $1 \mu\text{J}$ .

De plus, comme le montre la figure 3.13, les courbes du flux au centre de la propagation ont deux bosses distantes de 30 à 40  $\mu\text{m}$ . Cela pourrait être en relation avec l'apparition de la queue des dommages. La figure 3.14 est une représentation en trois dimensions du flux laser le long de la propagation.



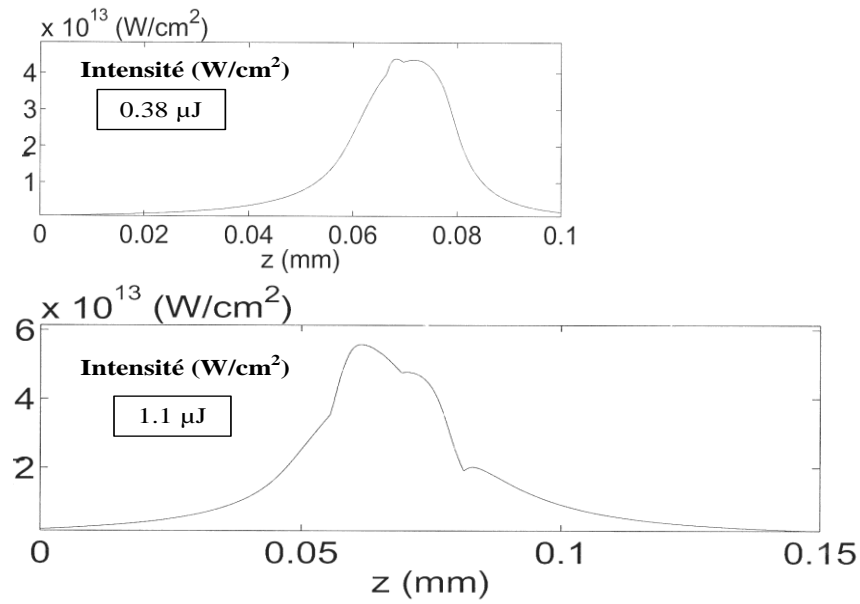
*Figure 3.13* : Simulation numérique : flux lumineux au centre de la propagation. Focalisation ( $\times 20$ ; NA 0.50). Impulsions : 800 nm, 1.1  $\mu\text{J}$ , 160 fs.



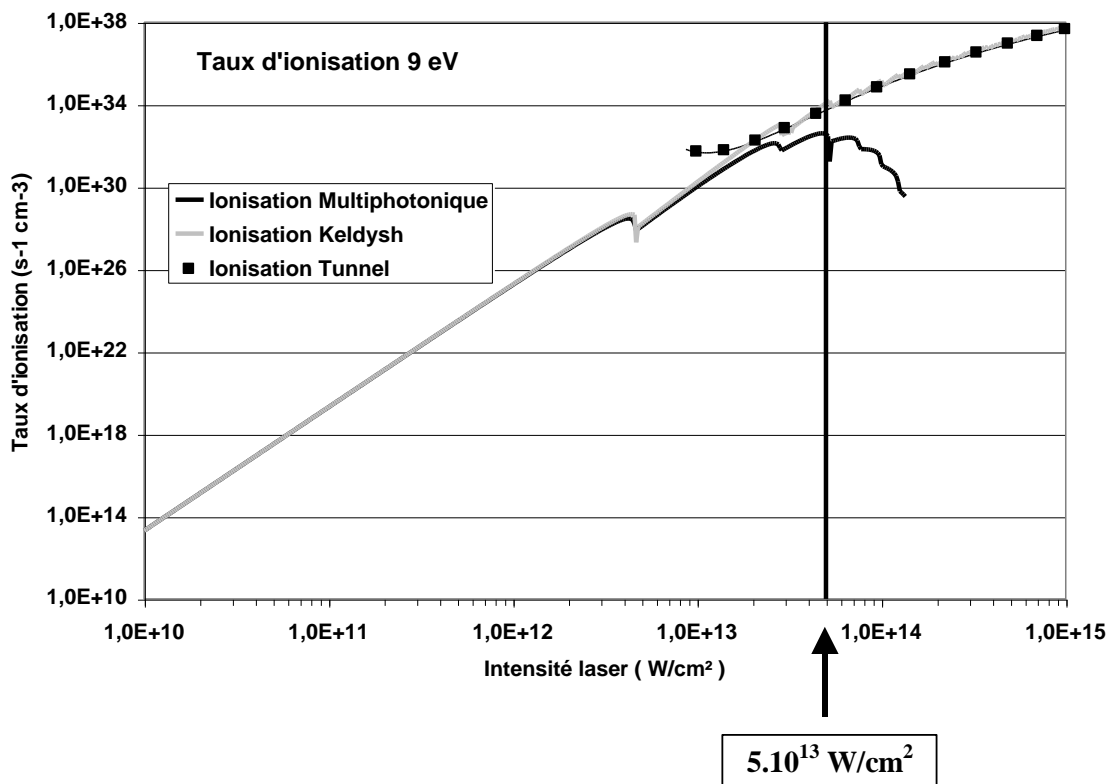
*Figure 3.14* : Simulation numérique : flux lumineux le long de la propagation. Focalisation ( $\times 20$ ; NA 0.50). Impulsions : 800 nm, 1.1  $\mu\text{J}$ , 160 fs.

Des études très récentes ont également été faites sur la propagation auto-guidée induisant des dommages [5]. Ils obtiennent des résultats expérimentaux proches des nôtres. Par exemple avec un objectif d'ouverture numérique 0.3 focalisant des impulsions de 0.3 à 0.5  $\mu\text{J}$ , ils induisent des dommages dont la longueur est comprise entre 20 et 40  $\mu\text{m}$  et le diamètre de 1.7  $\mu\text{m}$ . Utilisant un taux de répétition de 1 kHz, ils posent plusieurs minutes pour induire leur dommages dans la silice. Le nombre de tirs par dommage correspond également aux expériences que j'ai réalisées.

La figure 3.15 donne l'intensité lumineuse pour 1.1  $\mu\text{J}$  et 0.38  $\mu\text{J}$ . Pour les 5 énergies simulées, le maximum d'intensité est de  $5 \pm 0.5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ . Il décroît avec l'intensité incidente. Si l'on reporte  $5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  sur la courbe du taux d'ionisation donnée au chapitre 1, on voit qu'à cette intensité, on se trouve dans une gamme décrite par l'effet tunnel (figure 3.16). La formule de Keldysh donnant l'ionisation multiphotonique et a fortiori la droite d'ionisation multiphotonique en  $(\sigma_K I^K)$  ne peuvent plus être utilisées. Ces résultats sur les intensités laser conforte notre choix sur l'utilisation de la formule complète de Keldysh pour la description du taux d'ionisation.



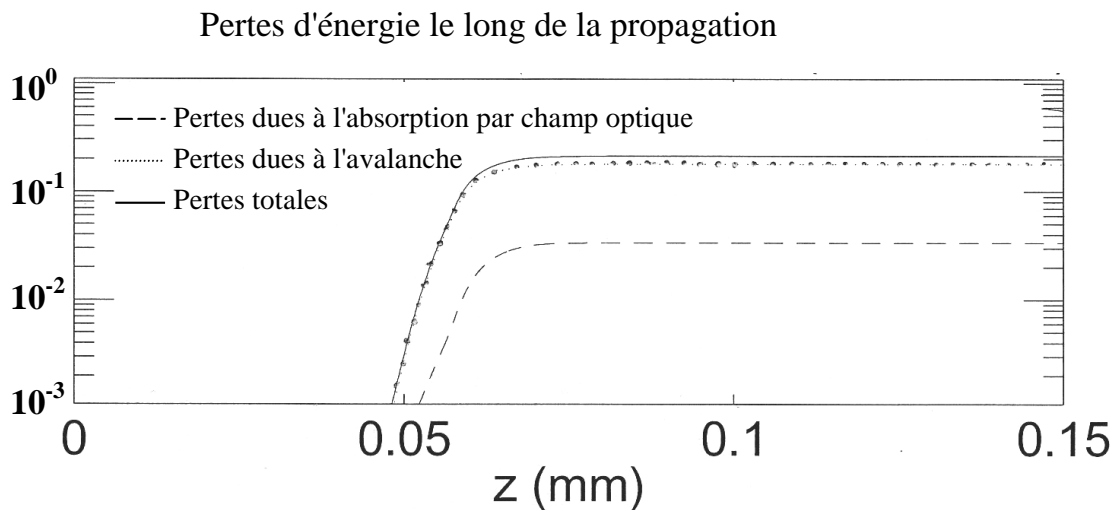
*Figure 3.15* : Simulations numériques : intensité lumineuse au maximum de l'impulsion le long de la propagation.  
 Focalisation ( $\times 20$ ; NA 0.50).  
 Impulsions : 800 nm, 160 fs. Haut : 0.38  $\mu\text{J}$ . Bas : 1.1  $\mu\text{J}$ .



*Figure 3.16* : Taux d'ionisation à 9 eV calculé à partir des deux formules de Keldysh pour l'ionisation multiphotonique ( $\gamma \gg 1$ ), l'effet tunnel ( $\gamma \ll 1$ ) et à partir de la formule générale valable sur toute la gamme de l'intensité laser. La flèche indique l'intensité maximale atteinte numériquement ( $5.10^{13} \text{ W/cm}^2$ ).

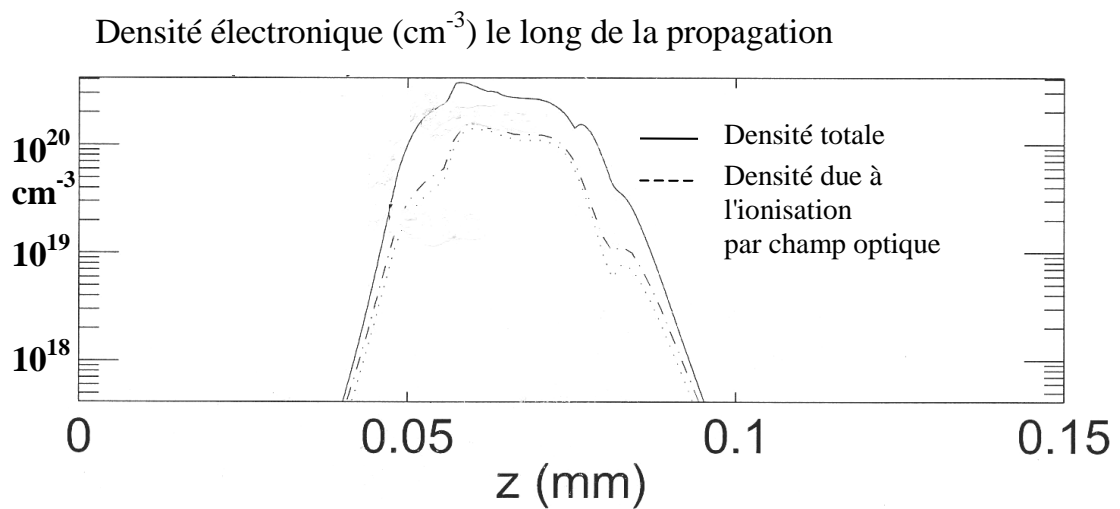
L'apparition des dommages est souvent attribuée à l'avalanche électronique. Il est donc très intéressant de voir le rôle joué par l'ionisation par champ optique par rapport à l'avalanche.

Pour cela nous avons la possibilité de comparer les pertes par avalanche aux pertes par absorption par champ optique. La figure 3.17 donne les pertes d'énergie totales, les pertes dues à l'absorption par champ optique et les pertes par avalanche pour une impulsion de 1.1  $\mu\text{J}$  et 160 fs focalisée dans la silice par un objectif (x20; NA 0.50). Si l'on fait le parallèle avec le graphique de la densité électronique, on constate que les pertes significatives débutent pour des densités de l'ordre de  $10^{19} \text{ cm}^{-3}$ . Pour les 5 énergies simulées, les pertes sont essentiellement dues à l'avalanche. Cela explique les observations du paragraphe 3.3 concernant la forte influence du temps de collision caractéristique  $\tau_c$  sur la courbe de transmission.



*Figure 3.17 : Simulation numérique : pertes d'énergie de l'impulsion le long de sa propagation. Impulsion : 800 nm, 1.1  $\mu\text{J}$ , 160 fs. Focalisation (x20; NA 0.50). Trait continu : pertes totales d'énergie. Pointillés : pertes d'énergie dues à l'avalanche. Tirets : pertes d'énergie dues à l'absorption par le champ optique.*

Cependant, la présence d'électrons libres est nécessaire pour que l'avalanche électronique puisse se déclencher. L'ionisation par champ optique crée les premiers électrons. Comme le montre la figure 3.18, l'ionisation par champ optique est l'effet dominant pour des densités électroniques inférieures à  $10^{18} \text{ cm}^{-3}$ . L'effet d'avalanche apporte une contribution supplémentaire. Au maximum de la densité électronique, 50 % des électrons proviennent de l'ionisation par champ optique et 50 % de l'ionisation par avalanche.



*Figure 3.18* : Simulation numérique : densité électronique le long de la propagation. Impulsion : 800 nm, 1.1  $\mu\text{J}$ , 160 fs. Focalisation (x20; NA 0.50). Trait continu : densité électronique totale. Tirets : densité électronique due à l'ionisation par le champ optique.

### **3.5. Transmission bi-impulsionnelle**

Nous avons vu au paragraphe 3.3.2 que les transmissions calculées sont supérieures à celles mesurées pour des énergies supérieures à 1  $\mu\text{J}$ . Nous en avons conclu qu'il existe un mécanisme d'atténuation supplémentaire dont le code ne tient pas compte.

Afin d'obtenir des informations sur ce nouveau mécanisme, nous avons réalisé des expériences de type pompe-test. Il s'agit de dupliquer une impulsion grâce à deux lames séparatrices et de modifier le décalage temporel entre les deux impulsions grâce à une ligne à retard.

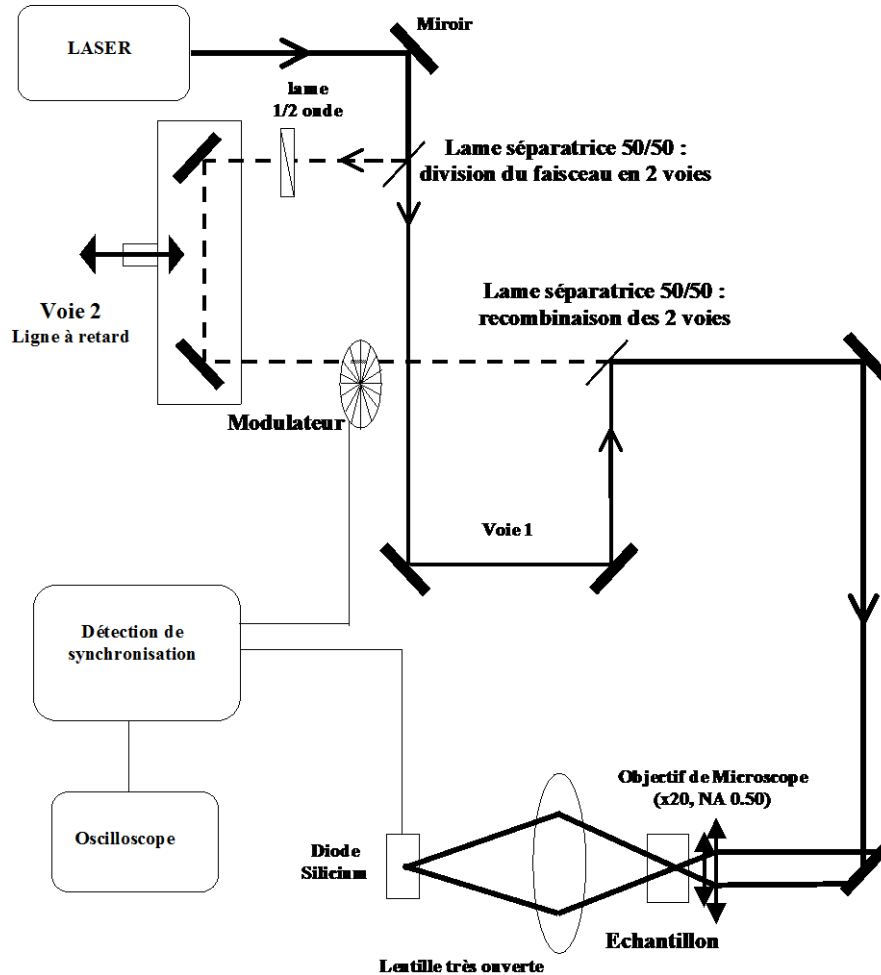
Ces expériences ont été réalisées en pompe-test et pompe-pompe avec des faisceaux collinéaires focalisés spatialement au même point par le même objectif de microscope de grandissement  $\times 20$  et d'ouverture numérique 0.50. Le recouvrement des deux voies au foyer de l'objectif est rendu possible grâce à la caméra de contrôle placée après l'échantillon. Le recouvrement est ensuite amélioré en optimisant le signal c'est-à-dire en augmentant au maximum l'absorption de la voie test lorsque que le décalage temporel est nul.

On impose à la voie test une fréquence différente de celle de la seconde voie dite voie pompe en "hachant" le faisceau grâce à un modulateur. Le détecteur de synchronisation relié au modulateur et recevant le signal de la diode ne détecte que le signal possédant la bonne fréquence, celle du modulateur. On détecte donc uniquement l'absorption de l'impulsion test due au plasma créé par l'impulsion de pompe.

Lorsque le délai entre les voies pompe et test est nul, on observe des interférences de type coin d'air ou circulaires. Afin d'éviter les fortes instabilités que ces interférences engendrent au niveau du signal détecté, une lame demi-onde est placée sur une des deux voies à  $45^\circ$  de la polarisation du faisceau afin d'obtenir une polarisation perpendiculaire. Les interférences qui apparaissaient pour un délai nul entre les deux voies ( $\Delta t = 0$ )



disparaissent. Les instabilités qu'elles provoquaient sont alors fortement réduites. Le schéma général de l'expérience est donné par la figure 3.19.

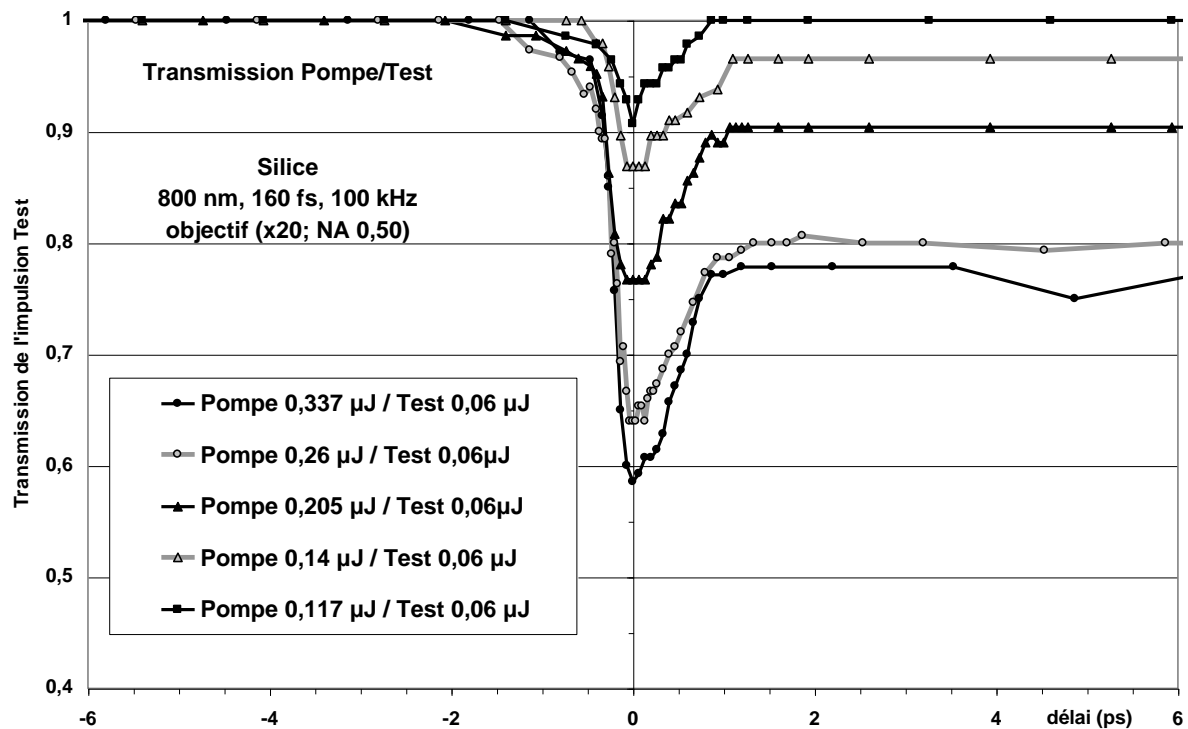


*Figure 3.19 : Schéma général de l'expérience pompe-test en transmission.*

Nous portons comme résultats les mesures différentielles de transmission. Cela correspond à mettre en évidence uniquement l'atténuation du faisceau sonde provoquée par la présence d'un plasma créé par la pompe. Des expériences ont été réalisées avec les deux sources laser (100 kHz, 160 fs) et (1 kHz, 50 fs).

Le graphique de la figure 3.20 montre les résultats obtenus en pompe-test en faisant varier le retard appelé aussi délai entre les deux voies et la puissance de la pompe pour une puissance de la voie test constante.

Les impulsions de la voie test ont une énergie inférieure au seuil de dommage. Elles ne modifient pas le matériau. L'impulsion sonde seule donne une transmission de 1. Lorsqu'elle arrive avant l'impulsion pompe, le résultat est représenté pour les délais temporels négatifs.



*Figure 3.20 : Résultats des expériences pompe-test dans la silice. Focalisation par objectif (x20; NA 0,50). Impulsion sonde : 800 nm, 0,06 µJ, 160 fs, 100 kHz modulé. Impulsion Pompe : 800 nm, 160 fs, 100 kHz, énergie indiquée pour chaque courbe.*

Tant que la pompe a une énergie inférieure au seuil de dommage, les impulsions de la voie test ne sont jamais absorbées quel que soit le délai.

Au voisinage du seuil d'endommagement de la silice, c'est-à-dire entre de 0,1 et 0,12 µJ, une variation rapide de l'absorption apparaît autour du délai nul ( $\Delta t = 0$ ). Cette chute de transmission qui varie avec le délai est caractéristique de la création d'un plasma. Si l'on mesure cette absorption en fonction de l'intensité du test (figures 3.21 et 3.22) on constate que la fraction absorbée est indépendante de l'intensité du test sauf aux très

hautes valeurs ( $E_{\text{test}} > 0.16 \mu\text{J}$ ). Il s'agit donc bien d'un processus de type avalanche où le nombre de photons absorbés est directement proportionnel à l'intensité du test.

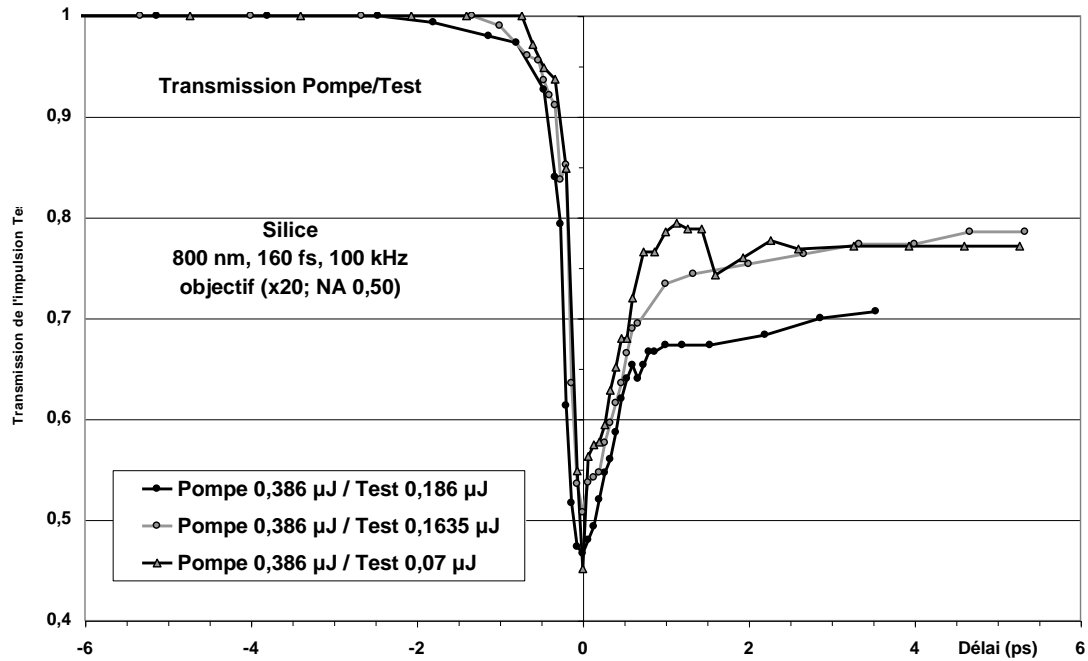
La durée de vie de ce plasma est de l'ordre de 1 ps. Son influence sur l'absorption de l'impulsion test décroît avec une forme exponentielle avec 150 à 400 fs. Cette décroissance exponentielle rapide est en accord avec les travaux de Tien et al. [8]. Elle

vient également conforter l'introduction du terme en  $\left[ -\frac{\rho(t)}{\tau_{\text{rec}}} \right]$  introduit dans l'équation

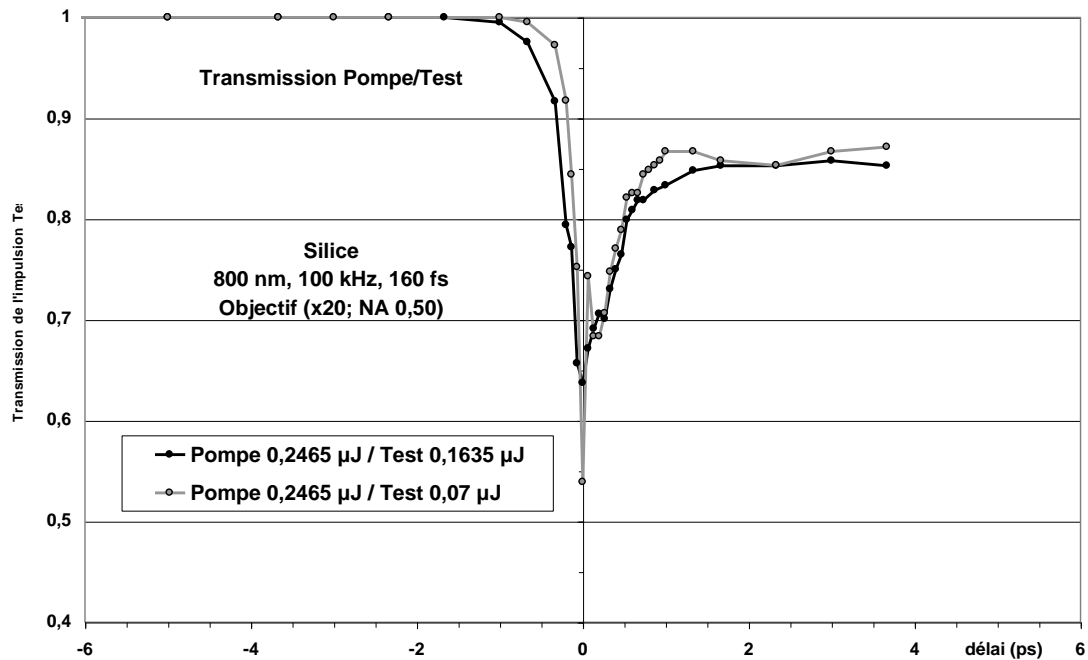
(3.2) pour l'évolution de la densité électronique ainsi que la valeur de  $\tau_{\text{rec}} = 150 \text{ fs}$  utilisé dans nos simulations numériques.

A plus haute énergie de pompe, on observe que la transmission ne remonte pas à 1 après 6 ps. Des expériences complémentaires que nous avons effectuées montrent que cette absorption qui apparaît sous la forme d'un plateau est encore présente plusieurs ns après le passage de l'impulsion pompe. Il ne peut s'agir de la décroissance du plasma créé par les impulsions pompe. Lors des expériences similaires employant le faisceau à 1 kHz, 50 fs, l'énergie des impulsions de la voie pompe a été augmentée jusqu'à  $1.8 \mu\text{J}$ . On retrouve dans les courbes présentées à la figure 3.23 les plateaux d'absorption créés par les impulsions focalisées dans la silice.

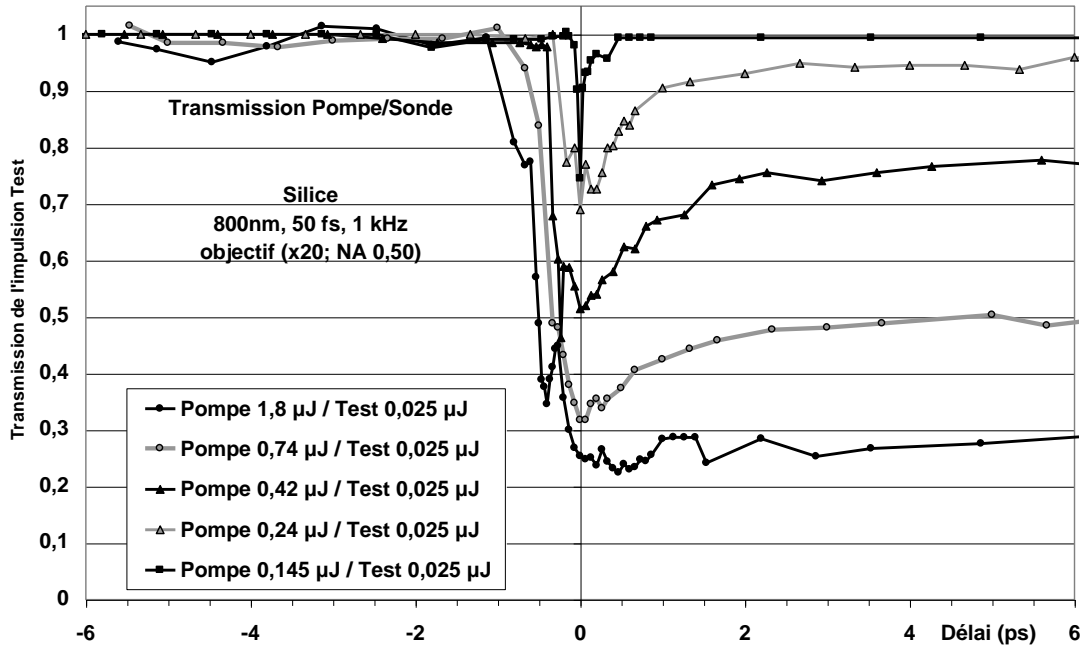
Le graphique de la figure 3.24 expose les courbes obtenues pour le quartz. Pour des énergies identiques à celles utilisées pour la silice, le test est beaucoup moins absorbé. On retrouve cependant les plateaux aux temps longs observés dans la silice.



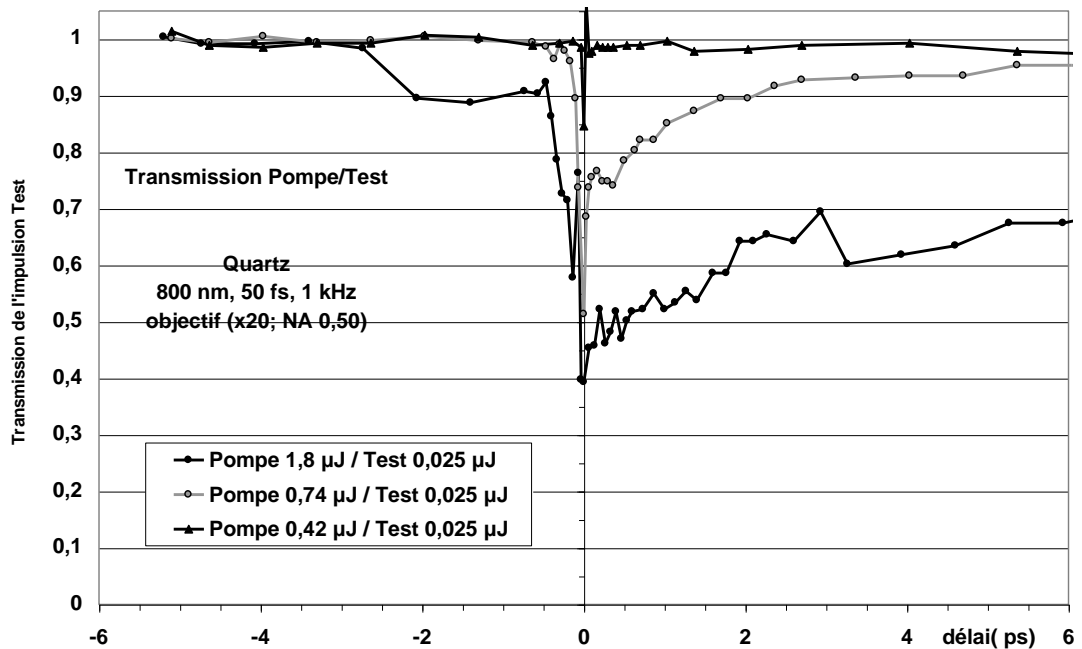
*Figure 3.21 : Résultats des expériences pompe-test dans la silice. Focalisation par objectif (x20; NA 0.50). Impulsion Test : 800 nm, 160 fs, 100 kHz modulé, énergie indiquée pour chaque courbe. Impulsion Pompe : 800 nm, 0.386  $\mu$ J, 160 fs, 100 kHz.*



*Figure 3.22 : Résultats des expériences pompe-test dans la silice. Focalisation par objectif (x20; NA 0.50). Impulsion Test : 800 nm, 160 fs, 100 kHz modulé, énergie indiquée pour chaque courbe. Impulsion Pompe : 800 nm, 0.2465  $\mu$ J, 160 fs, 100 kHz.*



*Figure 3.23 : Résultats des expériences pompe-test dans la silice. Focalisation par objectif (x20; NA 0.50). Impulsion Test : 800 nm, 0.025  $\mu$ J, 50 fs, 1 kHz modulé. Impulsion Pompe : 800 nm, 50 fs, 1 kHz, énergie indiquée pour chaque courbe.*



*Figure 3.24 : Résultats des expériences pompe-test dans le quartz. Focalisation par objectif (x20; NA 0.50). Impulsion Test : 800 nm, 0.025  $\mu$ J, 50 fs, 1 kHz modulé. Impulsion Pompe : 800 nm, 50 fs, 1 kHz, énergie indiquée pour chaque courbe.*

## Discussion des résultats

De l'étude des courbes réalisées en pompe-test, nous pouvons distinguer trois régimes:

- lorsque l'énergie de la pompe est inférieure au seuil d'endommagement il y a une absence de signal. Lors de nos expériences, les impulsions étant focalisées à l'aide d'un objectif ( $\times 20$  ; NA 0.50), le seuil d'endommagement est  $0.1 \mu\text{J}$ .
- lorsque l'intensité de l'impulsion pompe est égale ou très légèrement supérieure au seuil d'endommagement, un signal rapide caractéristique de la création d'un plasma est observé. La courte durée de vie de ce plasma est en accord avec Tien et al. [8].
- sur les autres courbes réalisées à plus haute énergie de pompe, il est possible de distinguer trois parties caractéristiques. Pour des délais négatifs, l'absorption augmente lorsque l'impulsion test se rapproche temporellement de l'impulsion pompe. Pour un délai nul, l'absorption est maximum. Puis comme pour des énergies proches du seuil d'endommagement, pendant la seconde partie qui dure moins d'une picoseconde, l'absorption diminue de façon exponentielle avec un temps caractéristique compris entre 150 et 400 fs. Il s'agit de la décroissance exponentielle du plasma. Ce comportement apparaît lorsque l'énergie incidente est suffisante pour créer un plasma qui va induire un dommage irréversible. En fait, tracer uniquement la transmission de l'impulsion test permet d'observer l'évolution de l'effet d'avalanche dans le temps. Après un délai de 1 ps, on constate l'apparition d'une nouvelle absorption de longue durée aux énergies incidentes élevées. Cette absorption n'est pas prédite par le code.

Pour l'instant, nous n'avons pas d'interprétation définitive sur cette longue absorption.

On constate sur la figure 3.20 que la décroissance du signal devient de plus en plus longue lorsque l'intensité de pompe augmente. De plus, si l'on compare les courbes à

100 kHz et à 1 kHz, il semble qu'il existe une tendance à ce que cette absorption longue durée soit favorisée par un haut taux de répétition à énergie de pompe égale. Par ailleurs si l'on compare les résultats obtenus avec les mêmes impulsions focalisées dans le cristal de quartz et dans la structure amorphe de la silice, on voit une nette diminution de ce long signal dans la forme cristalline. Enfin, nous verrons dans le chapitre 4 qu'il existe, pour des énergies correspondant à cette absorption longue durée, un nouveau type de dommages que nous avons identifié comme étant d'origine thermique. L'ensemble de ces observations nous amène à suggérer que cette absorption longue durée est d'origine thermique. Elle pourrait correspondre par exemple à une phase fondue du matériau à très haute température. D. von der Linde et al. montrent notamment que l'ablation par des impulsions de durée de l'ordre de 100 fs peut être interprétée en termes de processus thermiques transitoires [10]. L'augmentation de la durée de cette absorption lorsque l'énergie augmente s'expliquerait par une augmentation du volume chauffé qui mettrait plus de temps à se refroidir. L'intervention d'effets thermiques expliquerait aussi le fait que dans la forme cristalline l'absorption est plus faible car l'évacuation thermique est favorisée par une conductivité thermique supérieure. Yamada et al. [5] font également état de l'influence du temps d'exposition sur l'apparition des dommages. Des expériences supplémentaires seront nécessaires pour bien comprendre ce phénomène.

Le même type d'absorption dans la silice a été observé et publié par Martin et al. [11, 12]. Ils supposent que cette longue absorption est due à la présence de défauts métastables dans la silice comme des excitons auto-piégés.

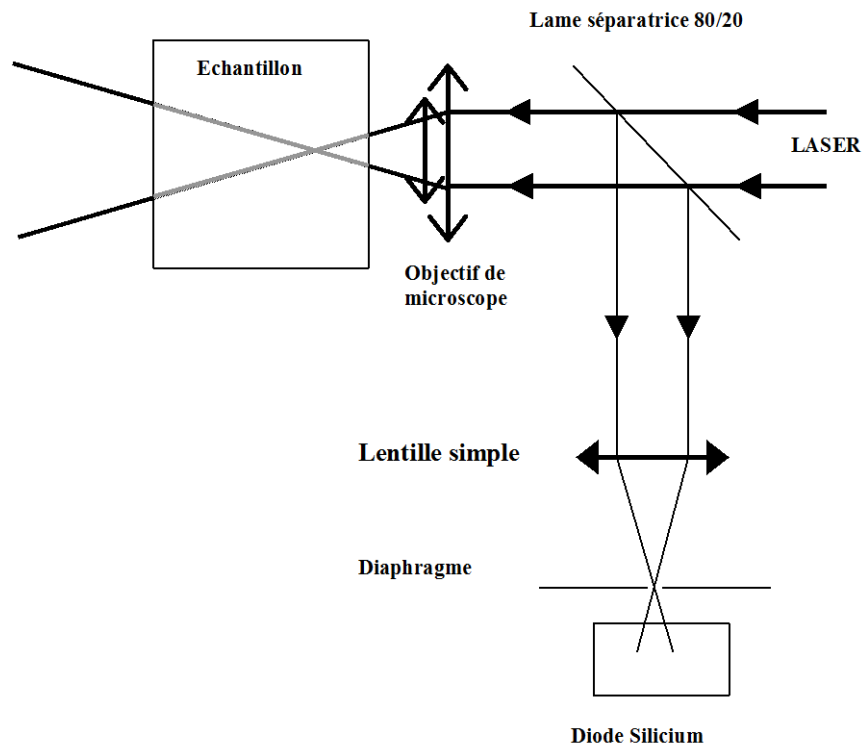
### **3.6. Expériences pompe-sonde en réflexion**

Il est généralement admis dans les publications qui traitent du claquage optique dans les matériaux transparents que les dommages apparaissent lorsque la densité électronique du milieu atteint la densité critique. Or, lorsqu'un plasma atteint la densité critique, il devient totalement réflecteur. Nous avons donc réalisé des expériences visant à observer et quantifier la forte réflexion laser attendue en travaillant au dessus des seuils de dommages optique de nos échantillons.

Nous avons utilisé un nouveau type de détection pour pouvoir travailler en réflexion. Une lame séparatrice de transmission 80% et réflexion 20% est placée devant l'objectif de microscope. Une lentille simple focalise le faisceau réfléchi au niveau d'un diaphragme circulaire de 500  $\mu\text{m}$ . La diode silicium est placée juste après ce diaphragme. Ce montage optique est basé sur le principe du retour inverse de la lumière. Le foyer de l'objectif est imagé au niveau de l'ouverture du diaphragme grâce à l'ensemble objectif-lentille. Le réglage est réalisé en focalisant un faisceau atténué sur la face d'entrée de l'échantillon. La réflexion due à l'interface est alors de l'ordre de 4% du faisceau incident. Nous pouvons ainsi calibrer la diode. Le diaphragme permet d'éliminer toute réflexion parasite sur les faces de l'échantillon et sur les faces des lentilles composant l'objectif de focalisation. Pour réaliser l'expérience, l'échantillon est déplacé vers l'objectif afin de travailler dans la masse et non à sa surface.

Ce système optique est décrit par le schéma de la figure 3.25.





*Figure 3.25 : Schéma de l'expérience pompe-sonde en réflexion.*

Aucune réflexion significative du test n'a pu être observée quel que soit l'échantillon (silice, quartz, ZBLAN), le laser employé (RegA 100 kHz et 160 fs ou 1 kHz et 50 fs) et le type d'expériences (pompe-sonde ou pompe-pompe). Le maximum de réflexion mesuré reste inférieur à 2%.

Plusieurs hypothèses à cette non-observation d'énergie réfléchie peuvent être avancées. Le recul du foyer de focalisation dû à l'effet Kerr optique peut empêcher le principe du retour inverse de la lumière de jouer convenablement son rôle en modifiant l'alignement réalisé en focalisant à la surface de l'échantillon. De même, si les deux voies n'ont pas la même énergie, elles ne se focalisent pas exactement au même endroit et le test pourrait ne pas voir le plasma créé par la pompe. Mais les expériences pompe-pompe réalisées permettent d'exclure cette hypothèse car dans ce cas les deux faisceaux subissent la même autofocalisation. Enfin la dernière hypothèse consiste à admettre que la densité critique n'est pas atteinte malgré l'obtention de dommages à l'intérieur du matériau.

Cette hypothèse est en complet accord avec les résultats numériques qui montrent qu'il y a une forte saturation de la densité des porteurs créés un ordre de grandeur en dessous de la densité critique.

Nous concluons que le plasma créé est inférieur à  $3.67 \cdot 10^{21} \text{ e}^-/\text{cm}^3$ . De plus, il existe une absorption supplémentaire qui n'est pas due à une augmentation de la densité jusqu'à la valeur critique mais semble correspondre à un nouveau processus d'absorption dans un plasma sub-critique. Ceci est en accord avec les simulations numériques qui montrent que la densité électronique ne dépasse pas  $4 \cdot 10^{20} \text{ e}^-/\text{cm}^3$  du fait de la défocalisation du faisceau par le plasma créé.

### **Conclusion**

Dans ce chapitre un autre régime de filamentation laser que celui décrit au chapitre 2 a été caractérisé. Les effets d'avalanches y sont importants et entraînent des dégâts permanents. Ce régime est caractérisé par l'apparition de dégâts dont les dimensions latérales sont par endroit nettement inférieures aux dimensions du faisceau laser lui-même. Une estimation du seuil de densité électronique qui entraîne l'apparition de dommages irréversibles a été faite. Nous avons aussi donné une valeur supérieure de la densité du plasma créé qui reste inférieure à la densité critique. Enfin, nous avons observé un nouveau phénomène d'absorption longue durée que nous attribuons à un fort échauffement local du milieu.

## Références bibliographiques

- [1] R.W. Boyd, Nonlinear Optics, Editeur Academic Press, Londres, 1992.
- [2] J. Marburger, Self-focusing Theory, Prog. Quantum Electron. 4, 35 (1975).
- [3] Y.R. Shen, The Principles of Nonlinear Optics. John Wiley & Sons, 1984.
- [4] D. Ashkenasi, H. Varel, A. Rosenfeld, S. Henz, J. Herrmann and E.E.B. Cambell, Appl. Phys. Lett. 72, 1442 (1998).
- [5] K. Yamada, W. Watanabe, T. Toma, K. Itoh and J. Nishii, Opt. Lett. 26, 19 (2001).
- [6] L.V. Keldysh, Soviet Physics JETP 20, 1307 (1965).
- [7] P. Audebert, Ph. Daguzan, A. Dos Santos, J.C. Gauthier, J.P. Geindre, S. Guizard, G. Hamoniaux, K. Krastev, P. Martin, G. Petite and A. Antonetti, Phys. Rev. Lett. 73, 1990 (1994).
- [8] A.-C. Tien, S. Backus, H. Kapteyn, M. Murnane and G. Mourou, Phys. Rev. Lett. 82, 3883 (1999).
- [9] Documentation Heraeus Silice transparente et opaque.
- [10] D. von der Linde and K. Sokolowski-Tinten, Appl. Surf. Sc. 154-155, 1 (2000).
- [11] P.Martin, S. Guizard, Ph. Daguzan, G. Petite, P. D'Olivera, P. Meynadier and M. Perdrix, Phys. Rev. B 55, 5799 (1997).
- [12] F. Quéré, Thèse de Doctorat, Université Paris VI, octobre 2000, Etudes des mécanismes d'excitation électronique associés au claquage des diélectriques induit par un champ laser intense.



## Chapitre 4

### ***CARACTERISATIONS DES DOMMAGES***

Les chapitres 2 et 3 ont présenté des résultats issus des expériences en laboratoire et des calculs numériques sur la propagation des impulsions ultra-courtes dans des milieux solides transparents. Si la propagation étudiée au chapitre 2 se présente sous la forme d'une longue filamentation induisant peu de dégâts dans le matériau, ce n'est pas le cas pour la propagation étudiée au chapitre 3 où les impulsions focalisées plus fortement causent des dommages irréversibles. Les chapitres précédents se sont tournés vers l'étude de la propagation en faisant en partie abstraction des dommages causés. Ce chapitre va étudier en détail ces modifications induites grâce à différents types de microscopies et de spectroscopies. Les défauts induits par les impulsions seront ensuite caractérisés par l'intermédiaire de la fabrication et de l'utilisation d'éléments optiques tels que des réseaux de diffraction en transmission et des guides d'onde.

#### **4.1. Seuils de dommage en régime impulsionnel**

Le claquage induit par laser dans les milieux optiquement transparents a été très étudié depuis l'avènement du laser [1-4]. L'intérêt de l'étude de ces dommages optiques s'est accru depuis l'existence des lasers de puissance et ils ont fait l'objet de nombreuses publications [5]. Les techniques nouvelles de production d'impulsions courtes telles que l'amplification d'impulsions à dérive de fréquence ont permis dès le début des années 1990 de produire des impulsions subpicosecondes. Le développement de ces lasers impose aux matériaux des intensités de plus en plus élevées. D'un point de vue pratique,

ces hautes intensités ouvrent la porte sur de nouveaux domaines de la physique et fournissent de nouvelles opportunités de recherche. Par exemple, les interactions de ces impulsions laser ultracourtes avec la matière mènent à des limites physiques mal connues. De plus, les hautes puissances laser produites sont limitées par les seuils de dommages des optiques des chaînes d'amplification [6]. La compréhension des mécanismes responsables des dommages optiques devient alors capitale.

#### **4.1.1. Comportement pour des impulsions longues**

Pour des impulsions plus longues que quelques dizaines de picosecondes, les modifications irréversibles (ablation en surface d'un matériau ou fracture dans la masse) sont liées à un dépôt conventionnel de la chaleur conduisant à la fusion et à l'ébullition du matériau diélectrique ainsi qu'à l'effet d'avalanche électronique. Lorsqu'une impulsion longue se propage dans le milieu transparent, les premiers électrons dans la bande de conduction sont produits par l'avant de l'impulsion puis chauffés, excités par la queue de l'impulsion. Les électrons ayant le temps de se multiplier, l'effet d'avalanche joue un rôle très important dans l'apparition des dommages [2, 7].

Il est bien établi que, pour des durées d'impulsions  $t$  variant de 20 ps à 10 ns dans différents types de matériaux diélectriques, le seuil de dommage en densité d'énergie ou flux laser ( $J/cm^2$ ) a une dépendance en  $t^{1/2}$  [8]. Ce comportement est en accord avec le modèle décrit par R.M. Wood [9] qui lie le seuil de dommage à la conduction thermique vers le réseau. Le comportement en  $t^{1/2}$  est gouverné par la loi de diffusion de la chaleur. L'augmentation de la température au niveau d'une surface absorbante soumise à une exposition laser est en effet de la forme :

$$\Delta T(t) = \frac{2\alpha I_0 \sqrt{t}}{\sqrt{\pi \kappa \rho_d C}}$$

Le faisceau laser est caractérisée par le temps  $t$  d'irradiation et l'intensité laser  $I_0$ . Le matériau intervient au niveau de l'absorption  $\alpha$ , de la conductivité thermique  $\kappa$ , de sa densité  $\rho_d$  et de sa chaleur spécifique  $C$ .

#### **4.1.2. Introduction des impulsions courtes**

Les interactions conduisant à l'endommagement d'un matériau par une impulsion de durée inférieure à quelques ps ne sont pas de même nature que celles des impulsions plus longues. A la différence des longues impulsions laser, une impulsion courte qui se propage crée des électrons dans la bande de conduction mais elle a peu de temps pour les accélérer à des niveaux énergétiques supérieurs. Lorsque la durée de l'impulsion diminue, le rôle joué par l'effet d'avalanche décroît.

Malgré les connaissances anciennes et les nombreux travaux récents, il existe des controverses et par conséquent des incertitudes sur le rôle joué par l'ionisation multiphotonique ou tunnel, l'effet d'avalanche électronique et le plasma créé lors de l'apparition des dommages dans les matériaux transparents [10]. Ce paragraphe va décrire les différentes versions scientifiques récentes des interactions des impulsions ultracourtes avec les milieux solides transparents. Le paramètre le plus étudié pour son influence sur les seuils de dommage a été la durée des impulsions [11-18]. Certains groupes ont étudié l'influence du gap [16] et de la longueur d'onde [12-14].

#### **4.1.3. Déviation à la loi en $t^{1/2}$**

Du et al. [11] ont étudié les seuils de dommage lors de la focalisation à la surface d'un échantillon de silice en faisant varier la durée d'impulsion de 150 fs à 7 ns (longueur d'onde de 780 nm). L'émission plasma et le changement de transmission appuyés par

des constatations visuelles ont été utilisés comme diagnostics afin de déterminer les seuils de dommages optiques. Si les mesures du changement de transmission du faisceau incident n'ont pas été concluantes, les fortes variations de l'émission plasma au voisinage du seuil de dommage ont permis à cette équipe d'être la première à faire état d'une variation de la loi en  $t^{1/2}$  pour des impulsions subpicosecondes. Ils mettent également en avant l'augmentation du caractère déterministe du claquage pour des durées d'impulsions inférieures à 10 ps en opposition aux impulsions plus longues. Leurs données expérimentales montrent la dépendance en  $t^{1/2}$  du seuil de dommage induit par des impulsions de durée comprise entre 10 ps et 7 ns. Par contre, lorsque la durée des impulsions est plus courte que quelques ps, le seuil de dommage commence à augmenter. En s'appuyant sur l'expression donnée par Thornber [19] pour le taux d'ionisation utilisé pour décrire le processus d'avalanche, ils expliquent l'augmentation du seuil de dommage lorsque la durée d'impulsion diminue. La conclusion générale indique que l'interaction d'impulsions de durée 150 fs reste dominée par le processus d'avalanche.

#### **4.1.4. Equation d'évolution de la densité électronique**

Stuart et al. [12-14] ont réalisé le même type d'expériences que Du et al. [11] sur la silice mais avec des longueurs d'onde de 1053 et 526 nm, les durées d'impulsions variant de 270 fs à 1 ns. Ils observent également une déviation à la loi en  $t^{1/2}$  pour l'apparition des seuils de dommage pour des durées d'impulsions inférieures à 20 ps. Cependant, ils n'ont pas relevé l'augmentation décrite par Du et al. [11] mais un changement de pente tendant vers une saturation.

En admettant que la production de dommages dans les matériaux a lieu lorsque la densité électronique  $\rho(t)$  atteint la densité critique, Stuart et al. ont développé un modèle



théorique basé sur la production d'électrons par ionisation multiphotonique, le chauffage par effet Joule et par ionisation collisionnelle (effet d'avalanche). Le chauffage des électrons dans la bande de conduction est pris en considération en utilisant un modèle de Drude incluant la dépendance de la conductivité par rapport à l'énergie des électrons. Le modèle fait aussi l'approximation qu'un électron de la bande de conduction ionise un électron de la bande de valence dès qu'il a assez d'énergie pour le faire. En d'autres termes, le modèle suppose qu'il n'y a pas d'électrons dans la bande de conduction dont l'énergie est supérieure au bas de la bande. Ceci est valable tant que le matériau n'est pas totalement ionisé. Le modèle de Stuart suppose aussi que la distribution d'énergie des électrons de la bande de conduction ne change pas de forme lorsque la densité électronique augmente. Combinant ce modèle avec le taux d'ionisation multiphotonique donné par Keldysh [20], ils obtiennent l'équation de l'évolution de la densité électronique basée sur une équation de Fokker-Planck, valable lorsque la largeur de la bande énergétique est très supérieure à l'énergie d'un photon.

$$\frac{d\rho(t)}{dt} = \alpha I(t)\rho(t) + R(t)$$

$$R(t) = \sigma_K I^K(t)$$

$I(t)$  est l'intensité de l'impulsion laser,  $\alpha$  le coefficient d'avalanche et  $\sigma_K$  est la section efficace d'absorption pour le plus petit  $K$  tel que  $K\hbar\omega \geq E_g$ .

On peut remarquer que cette équation n'est pas triviale. En effet, l'évolution temporelle de la densité électronique dépend de  $I$  mais aussi de  $R$  qui dépend de  $I^K$ .

Cette équation est en accord avec les expériences qui indiquent que la courbe de décroissance du seuil de dommage en fonction de la durée d'impulsion n'a plus une pente en  $t^{1/2}$  pour des durées d'impulsion inférieures à 20 ps. Ce changement de comportement de l'interaction avec des impulsions courtes (<10 ps) et avec les impulsions plus longues (>100 ps) est interprété par la manière de créer les dommages.

Si les dommages induits par les impulsions dites "longues" sont dus à un dépôt conventionnel de chaleur résultant de la fusion et de l'ébullition du matériau diélectrique, les impulsions plus courtes créent des défauts par formation d'un plasma et ablation. Cette différence est également observable par les modifications de morphologie des dommages.

L'obtention de la densité plasma critique correspondant à un régime de forte absorption est pris comme seuil de dommage macroscopique. Pour des impulsions inférieures à 100 fs, le seuil de dommage prédit par la simulation tend asymptotiquement vers la limite multiphotonique. Par conséquent, pour des impulsions inférieures à 30 fs, l'ionisation multiphotonique peut fournir à elle seule la densité électronique critique.

#### **4.1.5. Etude de la controverse Du/Stuart**

Varel et al. [15] ont repris les études de Du et Stuart en prenant les mêmes paramètres expérimentaux afin de pouvoir comparer les résultats et mettre fin à la controverse sur l'apparition des seuils de dommage pour les courtes durées d'impulsions. Les différentes méthodes de diagnostics pour l'apparition des dommages ont pu donner des résultats différents lors des expériences. La longueur d'onde du laser incident (780 nm pour Du et al. [11] et 1053 nm pour Stuart et al. [12-14]) et le nombre de tirs laser sur le matériau (tir unique pour Du et al. et tirs multiples pour Stuart et al.) peuvent être la cause du désaccord des résultats expérimentaux. Varel et al. ont travaillé à 790 nm en tir unique et tirs multiples. Ils ont étudié l'émission plasma ainsi que les dégâts grâce à un microscope. Contrairement aux données de Du et al., cette équipe n'a pas observé d'augmentation de l'émission plasma pour les très courtes durées d'impulsions. Les résultats de Varel et al. [15] confirment donc ceux de Stuart et al. [12-14].

Lenzner et al. [16] ont également étudié les seuils de dommage pour des impulsions de 5 ps à 5 fs. Ils confirment les prédictions de Stuart et al. [12] sur le comportement linéaire de l'avalanche en fonction de l'intensité. A partir de la mesure de la profondeur d'ablation, ce groupe arrive à la conclusion que le claquage optique dans la silice est un processus dominé par l'avalanche pour des impulsions aussi courtes que 10 fs. Par contre, en accord avec une seconde publication de Du et al [21], ils annoncent des sections efficaces d'ionisation multiphotoniques plus faibles de plusieurs ordres de grandeur que ceux de la théorie de Keldysh [20]. L'hypothèse commune avancée est la réduction de l'ionisation multiphotonique par les collisions très fréquentes qui ont lieu pour les très hautes intensités laser pour lesquelles le déplacement des électrons devient plus grand que la distance interatomique.

#### **4.1.6. Décroissance rapide du plasma**

Li et al. [17] donnent une vision nouvelle des processus complexes intervenant lors du claquage optique. Grâce à une technique à deux impulsions laser décalées dans le temps et focalisées au même point de la surface de l'échantillon de silice, ils concluent que la relaxation du plasma est très rapide de sorte que la décroissance est terminée après 200 fs. Cette constatation les a amenés à introduire, dans l'équation de Stuart, un terme supplémentaire décrivant la décroissance exponentielle de la densité électronique. Ils obtiennent alors une équation d'évolution de la densité électronique de la forme :

$$\frac{d\rho(t)}{dt} = \alpha I(t)\rho(t) + \sigma_k I(t)^k - \frac{\rho(t)}{\tau}$$

En recoupant les résultats expérimentaux de Lenzner et al. [15] avec cette nouvelle équation, de nouvelles valeurs pour le coefficient d'avalanche et la section efficace

d'absorption multiphotonique apparaissent ( $\alpha_{\text{Silice}}=9.0 \text{ cm}^2/\text{J}$  au lieu de  $4\pm 0.6 \text{ cm}^2/\text{J}$  et  $\sigma_6=3.0 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-3} \text{ ps}^{-1} (\text{cm}^2/\text{TW})^6$  au lieu de  $6.10^{8\pm 0.9} \text{ cm}^{-3} \text{ ps}^{-1} (\text{cm}^2/\text{TW})^6$ ).

Leurs expériences n'ont pas permis d'observer de processus à l'échelle de la picoseconde indiquant que le processus de décroissance du plasma n'est pas dû au couplage électron-phonon. Par contre, la décroissance à l'échelle des 100 fs suggère que ce phénomène pourrait être de type recombinaison électron-électron induite par collision. Les auteurs précisent cependant que la décroissance plasma ne suit pas une simple décroissance exponentielle. Leur théorie reste donc très perfectible.

Les auteurs remarquent que le seuil de dommage à deux impulsions ne semble pas converger vers le seuil à une impulsion même après 10 ps. L'explication avancée par les auteurs est que ce seuil est fonction de la température. Après le passage de la première impulsion, la température du plasma augmente et par conséquent le seuil diminue. Le seuil de dommage à deux impulsions rejoint le seuil à une seule impulsion pour un délai de 1 à 3 ns.

Nous venons de voir qu'un grand nombre d'expériences et d'études théoriques ont été réalisées afin de déterminer les mécanismes responsables des dommages laser. Tien et al. [18] soulignent cependant que les modèles théoriques ne décrivent les expériences que partiellement et que les recherches sur les dommages aux temps très courts restent d'actualité. Ils reprennent les principales études expérimentales et théoriques sur les seuils de dommage dans la silice. Ils mettent en évidence la nécessité de prendre en compte l'ionisation par effet tunnel lorsque le paramètre de Keldysh est très inférieur à un. Ils proposent également une explication pour les résultats de Du et al. [11] qui montrent une augmentation du seuil de dommage lorsque la durée d'impulsion diminue sous 10 ps. Ces résultats controversés pourraient être dus à une forte densité électronique initiale provenant d'impuretés du matériau ou générée par un piédestal des

impulsions. Lorsque la densité électronique initiale est élevée, la réduction du seuil de dommage due à l'ionisation multiphotonique est moins importante car la densité électronique élevée favorise l'effet d'avalanche.

Grâce à l'expression de Thornber pour l'avalanche [19] et la théorie de Keldysh pour la photoionisation dans les solides [20], Tien et al. ont pu décrire l'ensemble des processus physiques sur toutes les échelles parcourues. Leur nouvelle équation décrit mieux les expériences que l'addition du terme linéaire en intensité pris antérieurement pour l'avalanche et l'approximation de l'absorption multiphotonique. Comme dans les publications précédemment décrites, ils confirment que, même pour des durées d'impulsion inférieures à 100 fs, l'ionisation par avalanche prédomine sur l'ionisation multiphotonique pour atteindre les seuils d'endommagement.

#### **4.1.7. Bilan bibliographique sur le claquage optique en impulsions courtes**

L'équation d'évolution de la densité électronique dite de Stuart est à la base de la plupart des théories développées depuis 1996. Elle a été utilisée dans de nombreuses publications [12-18]. Li et al. [17] l'ont complétée avec un terme de décroissance pour tenir compte du comportement expérimental de la décroissance très rapide de 100 fs.

Du et al. [11] ont interprété leurs résultats obtenus pour les seuils de dommage pour des impulsions d'une durée inférieure à 10 ps par un terme d'avalanche variant en racine carrée de l'intensité laser et par une ionisation multiphotonique jouant uniquement le rôle de précurseur pour l'avalanche électronique. Par contre, le modèle d'ionisation par collision dit de Stuart conduit à un taux d'avalanche variant linéairement avec l'intensité laser. Combiné avec le modèle de Keldysh pour l'ionisation multiphotonique, Stuart et al. parviennent à montrer que l'ionisation multiphotonique devient le terme dominant pour des impulsions plus courtes que 100 fs. Récemment des chercheurs ont remis ce

modèle en question [18]. Thornber prédit un taux d'avalanche dépendant de la racine carrée de l'intensité laser [19]. Comme pour la photoionisation plus d'expériences et de simulations sont nécessaires pour résoudre ces controverses.

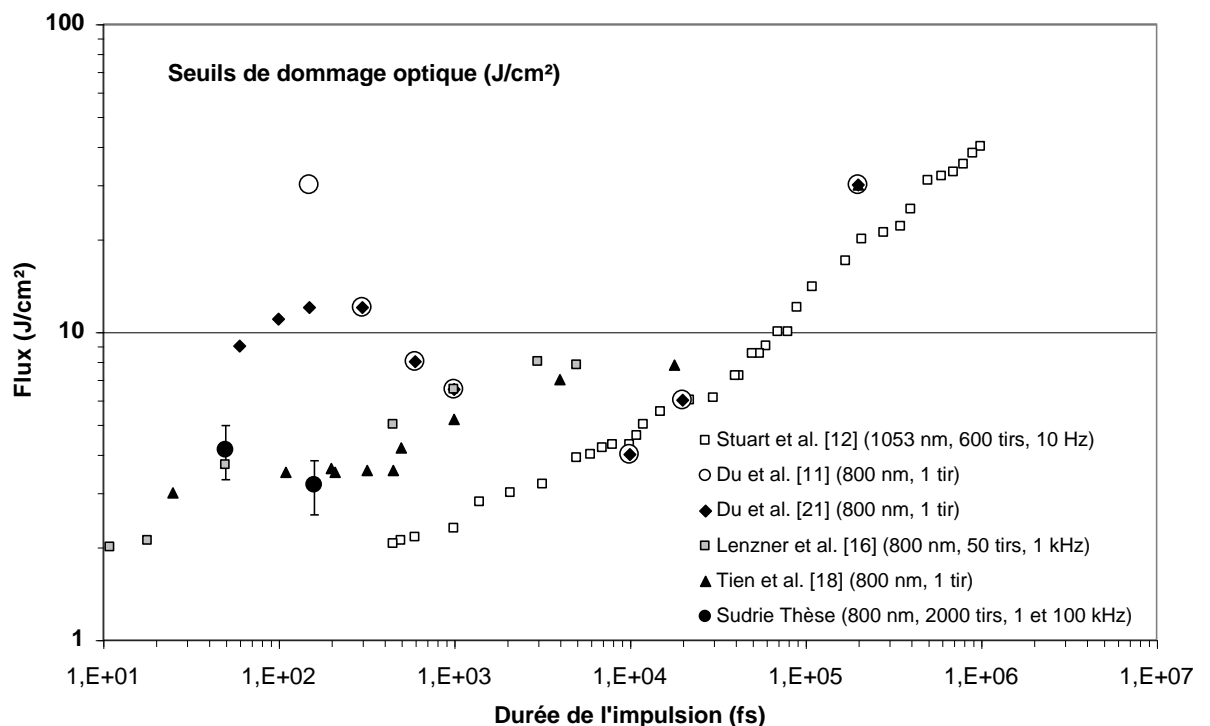
Cette étude bibliographique justifie l'équation d'évolution utilisée dans le code de propagation utilisé aux chapitres 2 et 3 pour simuler la propagation de nos impulsions dans la silice.

Cependant, toutes les études du seuil de dommage décrites plus haut ont été réalisées à la surface dans un souci d'éviter les phénomènes complexes accompagnant la propagation des impulsions laser dans la silice et notamment l'effet Kerr optique comme le signale D. von der Linde [10]. Soileau et al [22] qui ont étudié le rôle de l'autofocalisation dans l'apparition des dommages en volume concluent simplement que les seuils d'endommagement sont effectivement très influencés par les effets extrinsèques. C. Schaffer a étudié les seuils de dommage en volume dans des verres mais il s'est limité à des puissances inférieures à la puissance critique afin d'éviter cette autofocalisation qui ne lui aurait pas permis de connaître la taille de la tache laser [23, 24]. L'originalité des travaux décrits dans mon manuscrit vient du parallèle réalisé entre l'étude expérimentale de l'endommagement en volume pour des puissances élevées allant jusqu'à 200 MW et l'étude numérique de la propagation. Grâce à ce couplage entre les travaux expérimentaux et numériques, nous sommes capables d'apprécier le seuil de dommage en volume avec une bonne précision puisque l'analyse des résultats numériques donne la taille du faisceau laser dans la zone où les dégâts sont induits.

Les dommages dans les matériaux transparents sont associés à une rapide augmentation de la densité électronique jusqu'à la densité critique qui est de l'ordre de  $1.74 \cdot 10^{21} \text{ e}^-/\text{cm}^3$  à 800 nm dans la silice.

Le graphique de la figure 4.1 récapitule les seuils de dommages à la surface de la silice donnés par la littérature. J'ai également placé les deux seuils de dommage en volume dans la silice obtenus à 100 et 1 kHz. Mes résultats sont proches de ceux de Lenzner et al. [16] qui a travaillé également à 1 kHz ainsi que de ceux de Tien et al. [18]. Il est important de remarquer la grande diversité des résultats qui, par exemple, sont compris entre 3.5 et 10 J/cm<sup>2</sup> pour une durée de 100 fs. Il m'est possible de placer mes deux seuils de dommage optique sur ce graphique malgré les phénomènes non-linéaires qui accompagnent la propagation et qui modifient la taille de la tache laser au foyer. Les résultats numériques du chapitre 3 donnent en effet la taille du faisceau au niveau de la formation des dommages.

Pour les impulsions longues, on observe la décroissance du seuil d'endommagement optique qui suit la loi en  $t^{1/2}$  si  $t$  est la durée d'impulsion.



*Figure 4.1 : Seuil de dommage en surface de la silice en fonction de la durée de l'impulsion. Résultats tirés de la littérature. Points noirs: seuils de dommage en volume obtenus expérimentalement à 50 et 160 fs.*

#### **4.1.8. Conséquences des interactions sur les dommages induits**

La durée des impulsions femtosecondes est plus courte que le temps de transfert de l'énergie au réseau [12, 17]. La conséquence en est que les impulsions femtosecondes (subpicosecondes) induisent des modifications du matériau (ablation en surface ou changement de structure ou cavités dans des milieux transparents) très localisés c'est-à-dire sans dommages collatéraux et de façon très reproductible. Ce dépôt d'énergie très localisé pourrait être très utile dans les technologies biomédicales par exemple [25-27]. Depuis 1996, les modifications induites dans des milieux transparents tels que les verres grâce à des impulsions laser subpicosecondes sont utilisées pour le micro-usinage à la surface de métaux [28-29] ou de diélectriques [30-32] ou en volume [33-44].

#### **4.2. Introduction aux interactions entre les laser femtosecondes et les verres**

On peut considérer deux types de travaux concernant les interactions des impulsions ultra-courtes avec les milieux solides transparents. Le premier domaine concerne la propagation des impulsions dans le milieu ainsi que la génération de lumière blanche associée. Le second domaine concerne les modifications induites par la forte focalisation des impulsions à l'intérieur de verres transparents.

##### **4.2.1. Filamentation et génération de lumière blanche**

La description au chapitre 1 des phénomènes liés à la propagation des impulsions ultra-courtes a conduit à deux équations couplées décrivant l'évolution de l'enveloppe du champ électrique et celle de la densité électronique. Les chapitres 2 et 3 ont montré des résultats expérimentaux et numériques sur la propagation des impulsions dans différents



types de verres. Nous avons alors observé l'élargissement spectral classique accompagnant ce type de propagation. Cependant, ni l'étude expérimentale détaillée ni les causes physiques de la production de ce continuum de lumière blanche ne font l'objet de mes travaux. Comme indiqué au chapitre 2, les études d'Alexander Gaeta ont permis d'améliorer la compréhension de ce phénomène accompagnant la propagation non-linéaire des impulsions laser [45]. Il a montré que la génération du continuum est due à la formation d'une onde de choc optique à l'arrière de l'impulsion provoquée par la focalisation spatio-temporelle et l'auto-raïdissement de l'impulsion. Il indique aussi que ses résultats sont en relation avec l'endommagement des solides.

Efimov et al. ont montré qu'il est possible d'induire des modifications dans des verres tout en restant sous le seuil d'endommagement [46]. Ces modifications qui se présentent sous la forme de centres colorés sont formées par l'absorption des photons de courte longueur d'onde du continuum. Cependant, aucun centre coloré n'a été observé dans la silice, sans doute à cause de sa grande bande interdite. Cette publication se distingue de celles qui vont être présentées dans le paragraphe suivant où la forte focalisation des impulsions permet d'atteindre le seuil d'endommagement des verres.

#### **4.2.2. Modifications induites dans les verres par des impulsions ultra-courtes**

Ce paragraphe va introduire les modifications induites dans les verres par les impulsions laser femtosecondes en présentant les publications existantes au début de mes recherches sur ce sujet en janvier 1999.

Les premiers travaux publiés sur l'utilisation d'impulsions sub-picosecondes pour induire des modifications de structures intéressantes dans des verres sont récents puisque les premières publications datent de fin 1996 avec principalement les

recherches d'un groupe de Kyoto au Japon [33] et d'un autre groupe de l'université d'Harvard aux Etats-Unis [34].

Davis et al. [33] sont les premiers à décrire l'augmentation de l'indice de réfraction des verres au point de focalisation d'un faisceau laser femtoseconde. Utilisant des microscopes de grandissement x5 à x20 pour focaliser des impulsions de 120 fs et de quelques  $\mu\text{J}$  avec un taux de répétition de 200 kHz, ils induisent des modifications de quelques microns dans le plan perpendiculaire à l'axe laser et de quelques dizaines de microns selon l'axe laser z. Ils ont testé une large variété de verres tels que des verres de silice pure ou dopée au germanium ainsi que des verres au bore, des verres sodocalciques et des fluorures de type ZBLAN. Ils font alors les premiers constats concernant l'augmentation de l'indice de réfraction comprise entre  $10^{-2}$  et  $3.5 \cdot 10^{-2}$  fonction de la dose d'irradiation reçue localement. Ils ont aussi observé la formation de défauts tels que des centres Si E' et Ge E' dans les verres de silice ainsi que des oxygènes non pontant et des radicaux peroxy. Ils évoquent dès cette première publication la possibilité d'utiliser cette technique d'inscription directe, en opposition aux techniques d'inscription interférométriques, pour induire des structures guidant la lumière en trois dimensions. La publication suivante présente les premiers guides d'onde optiques réalisés par cette technique d'inscription directe par focalisation d'impulsions laser femtosecondes [36]. Cette deuxième publication montre par microscopie à force atomique l'effondrement de surface au dessus des modifications créées, proposant la densification des verres comme explication à cette augmentation de l'indice de réfraction. Les deux publications qui vont suivre [37, 38] n'apporteront pas de grandes nouveautés si ce n'est une confirmation de la formation de guides d'onde monomodes ou multimodes dans divers verres et l'influence de la puissance laser sur la taille des modifications. Cette équipe a également caractérisé la formation d'une

crystallisation microscopique dans des verres dopés avec  $\text{Ag}^+$  et  $\text{Ce}^+$  après focalisation d'impulsions de 150 fs à 630 nm [39]. Enfin, ils ont travaillé sur l'inscription de modifications ponctuelles dans le but de fabriquer des mémoires optiques en trois dimensions dans de la silice pure et de la silice dopée au germanium en focalisant des impulsions de 120 fs à 800 nm [40]. Une seconde équipe japonaise est parvenue à de très bons résultats dans ce domaine. Grâce à un objectif à immersion très ouvert (x100, NA 1.30) ils ont focalisé des impulsions à 532 nm pour 30 ps et à 400 nm pour 150 fs pour atteindre des densités de stockage de  $70 \text{ GB/cm}^3$  dans de la silice [41].

Utilisant pratiquement les mêmes conditions expérimentales que les expériences réalisées à Kyoto, Glezer et al [34] décrivent un comportement des verres complètement différent. En focalisant, à travers un objectif de microscope d'ouverture numérique  $\text{NA}=0.65$ , des impulsions IR femtosecondes (780 nm, 100 fs, 0.5  $\mu\text{J}$ ) ils obtiennent des modifications submicrométriques dans une large gamme de matériaux transparents. Cette publication compare les dommages induits par un laser de durée d'impulsion 100 fs et par un laser de 200 ps. Les impulsions de 200 ps forment des modifications 20 fois plus grosses. De plus, elles sont très irrégulières et présentent des fractures latérales. En août 1997, E.N. Glezer et E. Mazur [35] donnent des précisions importantes concernant les modifications qu'ils induisent dans les verres. Il s'agit en fait de micro-cavités créées par des micro-explosions. La silice serait chauffée localement à  $10^6 \text{ K}$  conduisant à des pressions supérieures à 1000 GPa. La matière est éjectée du centre formant une cavité entourée d'une région compacte. Le diamètre de ces cavités de 200 nm qui est inférieur à la limite de diffraction laser est attribué à une forte auto-focalisation des impulsions laser.

T. Cardinal et al. [42] ont présenté à la conférence CLEO'98 leurs résultats expérimentaux sur des guides d'onde de 5 mm de long dans des verres chalcogénures.

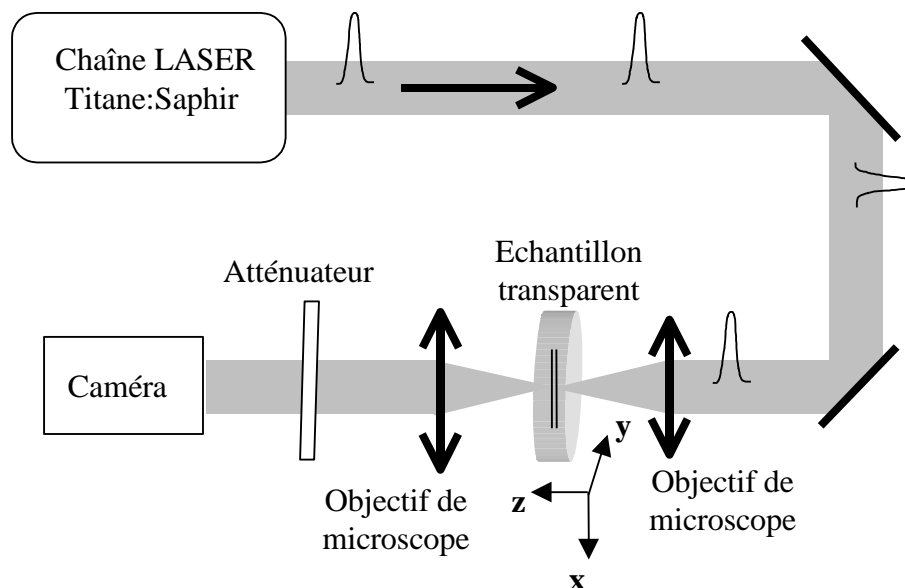
Les impulsions de 100 fs utilisées sont produites par un oscillateur Ti:saphir à 80 MHz. Elles sont donc très peu énergétiques (4 nJ). Cette publication vient conforter les travaux japonais sur l'augmentation de l'indice de réfraction présentés plus haut tout en montrant qu'il est possible de travailler avec de faibles impulsions produites par des oscillateurs Ti:saphir femtosecondes beaucoup moins coûteux et plus répandus que des lasers Ti:saphir régénératifs amplifiés. Il faut noter qu'en 1998, à ma connaissance, seuls deux lasers femtosecondes régénératifs à hauts taux de répétition (50-250 kHz) existaient dans les laboratoires français. Ce type de laser semble idéal pour la fabrication de nouveaux d'éléments optiques utilisant les absorptions multiphotoniques. En effet, ses impulsions sont assez énergétiques pour pouvoir induire des modifications dans la silice non dopée lorsqu'elles sont fortement focalisées. De plus, son taux de répétition élevé permet de travailler avec des vitesses de déplacement des échantillons intéressantes. Les oscillateurs Ti:Saphir ont des taux de répétition autour de 80 MHz mais l'énergie délivrée par impulsion ne permet de modifier que certains types de verres dont le gap est faible. Les lasers plus puissants ayant des taux de répétition de l'ordre de 1 kHz fournissent des énergies par impulsion de l'ordre de quelques mJ. Cependant, ce sont des lasers expérimentaux très coûteux qui nécessitent un entretien lourd. De plus le taux de répétition de 1 kHz demande trop de temps pour la fabrication d'éléments optiques.

### 4.3. Expériences d'interaction

#### 4.3.1. Montage expérimental

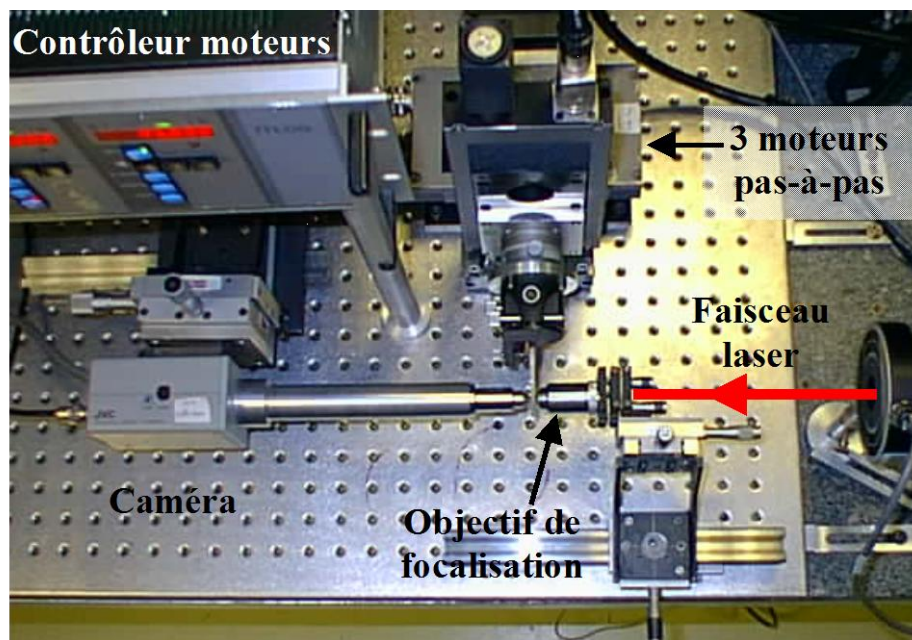
Le montage expérimental utilisé pour induire des modifications dans les verres est identique à celui présenté au paragraphe 3.1.

On focalise donc le faisceau laser dans le milieu solide transparent. L'échantillon est maintenu perpendiculaire à l'axe de propagation laser  $z$  grâce à deux réglages angulaires. Il peut être déplacé selon les trois axes  $x$ ,  $y$  et  $z$  grâce à trois moteurs pas-à-pas qui peuvent être contrôlés manuellement ou par ordinateur grâce à des programmes réalisés avec le logiciel Labview de National Instruments. Ces moteurs ont un pas de 1 et  $0.1 \mu\text{m}$ . Une caméra placée après l'échantillon permet de contrôler la profondeur de focalisation du laser. Le schéma de la figure 4.2 donne une vue d'ensemble simplifiée du montage optique utilisé.



*Figure 4.2: Vue d'ensemble du système optique expérimental.*

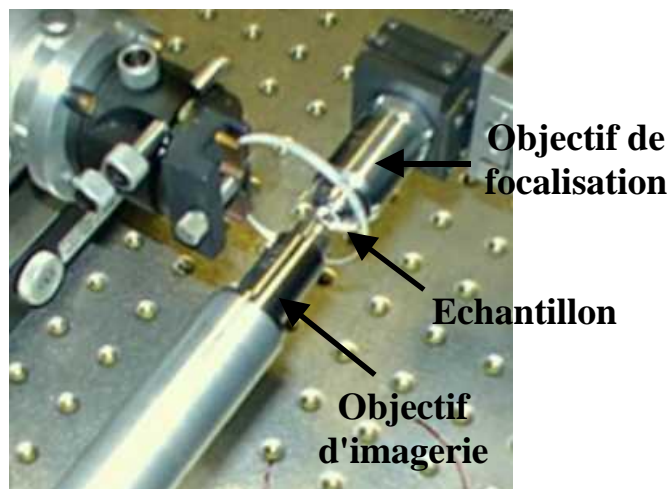
La photo de la figure 4.3 montre le système optique au niveau de l'échantillon. On distingue à droite l'objectif de focalisation avec ses réglages manuels linéaire  $x$ ,  $y$  et  $z$  et angulaires  $\theta$  et  $\varphi$ . En haut de la photo se trouvent les trois moteurs pas-à-pas positionnés selon les axes  $x$ ,  $y$  et  $z$  ainsi que leur contrôleur. Enfin à gauche de la photo apparaît la caméra de contrôle et son objectif d'imagerie. Cette caméra dont la position peut être réglée finement grâce à des déplacements manuels est positionnée sur un rail afin d'être éloignée de la zone d'interaction lors des expériences laser afin d'éviter son éblouissement et une éventuelle destruction de son objectif de reprise d'image par les impulsions focalisées. Le faisceau peut être stoppé par l'obturateur qui est visible en bas à droite de la photo. Il est contrôlé également manuellement ou par ordinateur.



*Figure 4.3 : Vue d'ensemble du système optique expérimental*

### 4.3.2. Schéma de principe optique au niveau de la zone d'interaction

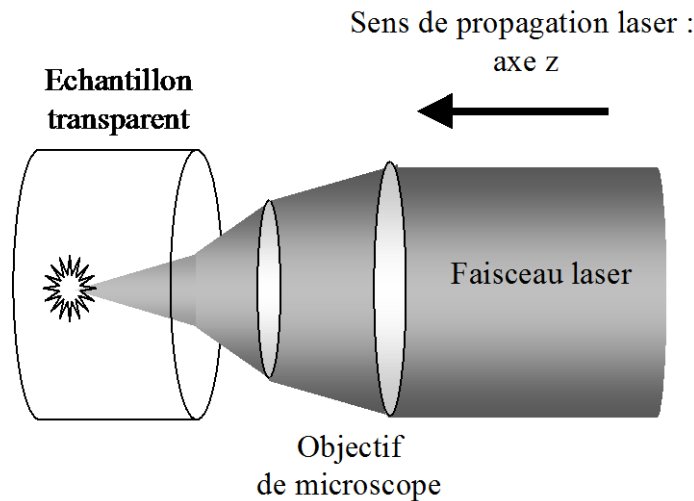
La photo de la figure 4.4 montre la zone d'interaction. On reconnaît l'objectif de focalisation des impulsions et l'objectif de reprise d'image monté sur le tube de la caméra de contrôle. L'échantillon de silice est placé entre ces deux objectifs. Il s'agit dans ce cas d'une lame de silice amorphe de diamètre 50 mm et d'épaisseur 3 mm. Elle est tenue par une pince montée sur un support de prisme possédant plusieurs réglages angulaires. Grâce à ce système, la face d'entrée de l'échantillon peut être positionnée avec précision dans un plan (xy) perpendiculaire à l'axe laser z. On procède par auto-collimation du faisceau laser basée sur le principe de retour inverse de la lumière en enlevant l'objectif de focalisation.



*Figure 4.4 : Vue de la zone d'interaction*

Le schéma de la figure 4.5 représente la zone d'interaction entre le faisceau laser et l'échantillon. Les impulsions sont focalisées par un objectif de microscope représenté ici par un système optique de deux lentilles. Pour estimer la profondeur du foyer dans le milieu il est nécessaire de tenir compte de la réfraction de l'onde lors du passage air-

verre. Lorsque le faisceau traverse l'interface air-échantillon, il subit la réfraction qui éloigne le foyer linéaire de l'objectif par rapport à une focalisation dans l'air. Les impulsions se propagent dans l'échantillon de façon non-linéaire et lorsque l'intensité est suffisante, un plasma se crée du fait des absorptions multiphotoniques décrites précédemment.

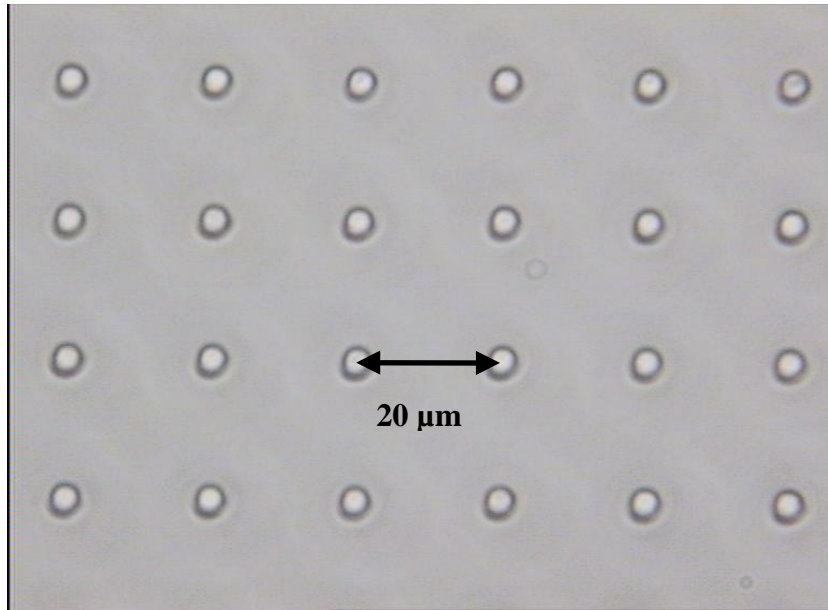


*Figure 4.5 : Représentation schématique de la focalisation du faisceau dans le solide transparent.*

### **4.3.3. Principe des inscriptions**

Lorsque les impulsions laser sont focalisées dans l'échantillon grâce à un objectif de microscope, si l'échantillon reste immobile, une modification ponctuelle est inscrite à l'intérieur d'un matériau. La figure 4.7 montre un ensemble de points séparés par 20  $\mu\text{m}$  observés au microscope optique.



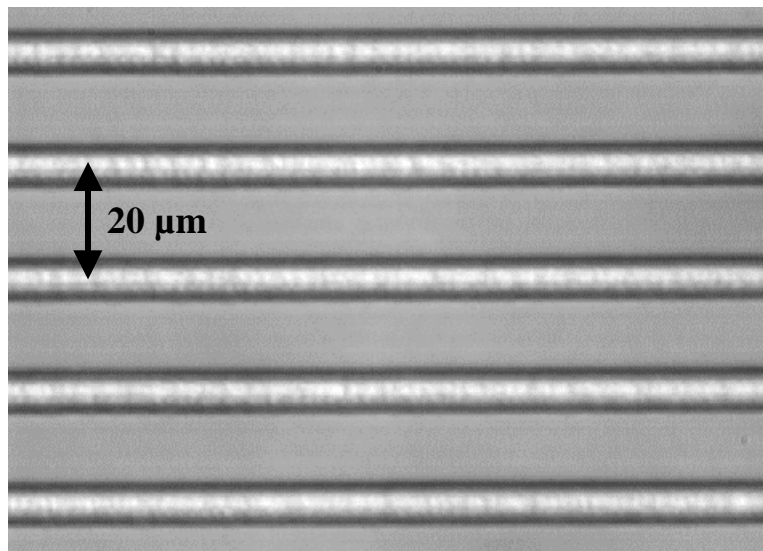


*Figure 4.6 : Observation au microscope optique de dommages ponctuels induits par focalisation d'impulsions laser dans un échantillon de silice. Objectif (x20; NA 0.50), impulsions (800 nm, 1  $\mu$ J, 160 fs), taux de répétition 200 kHz, temps d'exposition par point 2 s.*

Avant toute investigation plus poussée, la première chose simple à noter est la similitude de tous les points que ce soit au niveau de leur forme, de leur taille et de leur aspect. Cette régularité est due à trois aspects expérimentaux. Premièrement, le laser délivre des impulsions de manière stable. Deuxièmement, du fait du taux de répétition important, chaque point est exposé à un grand nombre de tirs laser. D'éventuelles petites instabilités d'une impulsion à l'autre sont alors moyennées. De plus, il est bien établi que les impulsions ultra-courtes induisent des défauts de manière très contrôlée car elles déposent de l'énergie par absorption multiphotonique sans les phénomènes de fusion, onde de choc et craquelures qui accompagnent la focalisation d'impulsions longues. Les dégâts induits par des impulsions longues sont de taille plus grosse et irréguliers car ces impulsions longues cèdent leur énergie par dépôt conventionnel de la chaleur.

Il faut aussi remarquer que la distance entre tous les points est identique. Cette régularité montre la précision des déplacements de l'échantillon grâce aux moteurs pas à pas utilisés.

Si l'on déplace l'échantillon non plus par saut en masquant le faisceau par un obturateur mécanique à chaque déplacement mais en continu sans obturer le faisceau ni stopper l'échantillon, on expose l'échantillon sur une ligne. On crée alors des modifications le long d'une ligne. La figure 4.8 montre plusieurs lignes parallèles séparées de  $20\ \mu\text{m}$ . Comme pour la matrice de points de la figure précédente, il faut remarquer la régularité des lignes et du pas entre celles-ci.

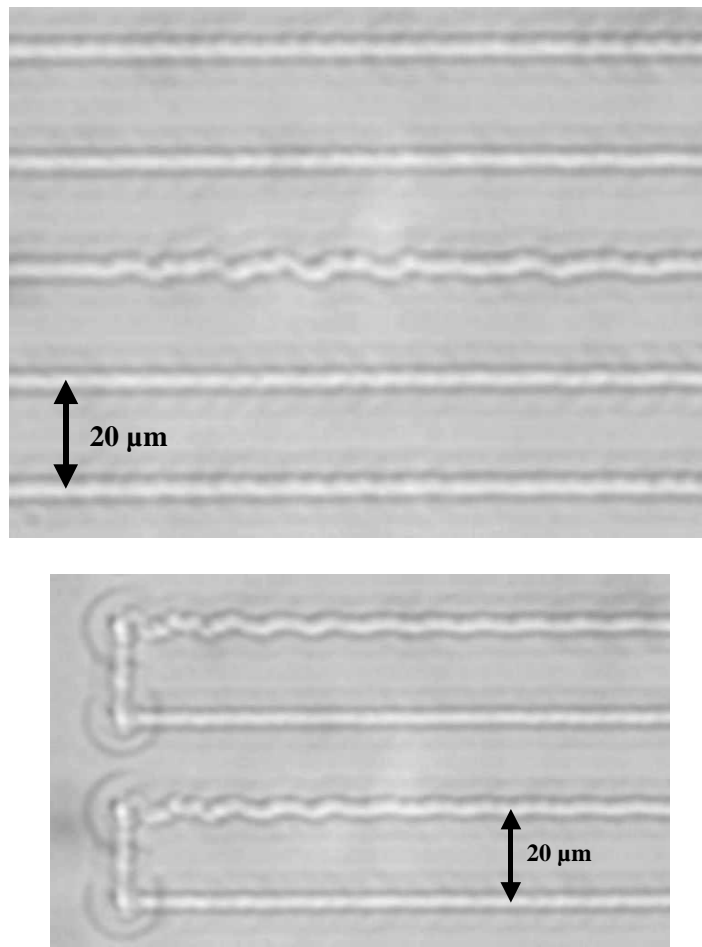


*Figure 4.7 : Observation au microscope optique de lignes de dommages induites par focalisation d'impulsions laser dans un échantillon de silice. Objectif ( $\times 10$ ; NA 0.25), impulsions (800 nm, 1  $\mu\text{J}$ , 160 fs), taux de répétition 200 kHz, vitesse de déplacement de l'échantillon 100  $\mu\text{m/s}$ .*

Si le pas est réduit de façon à être inférieur à la largeur des lignes on obtient alors une "couche quasi-homogène" dans le plan (xy). Il est également possible de déplacer l'échantillon le long de l'axe laser z afin de créer des structures en trois dimensions.

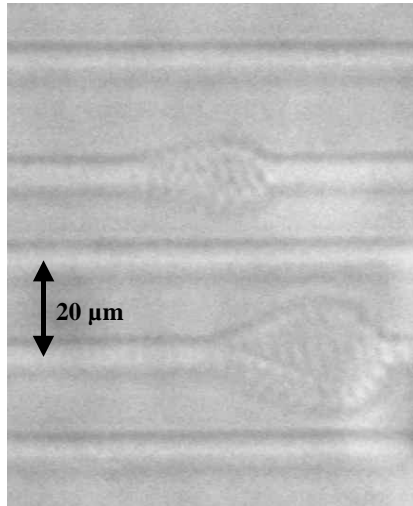
Si les techniques d'interaction ne sont pas adaptées, on s'expose à divers problèmes expérimentaux dont deux exemples sont présentés sur les photos des figures 4.9 et 4.10.

Si les moteurs ne sont pas adaptés il peut y avoir des problèmes d'à-coups faisant vibrer l'échantillon.



*Figure 4.8 : Observation au microscope optique d'irrégularités sur des lignes de dommages induites par focalisation d'impulsions laser dans un échantillon de verre. Objectif (x10; NA 0.25), impulsions (800 nm, 1 μJ, 160 fs), taux de répétition 200 kHz, vitesse de déplacement 500 μm/s.*

Comme le montre l'image de la figure 4.9, des vibrations du sol ou de la table optique peuvent aussi introduire des anomalies au niveau des inscriptions dans le cas où le système de maintien de l'échantillon n'est pas stable.



*Figure 4.9 : Observation au microscope optique d'irrégularités sur des lignes de dommages induites par focalisation d'impulsions laser dans un échantillon de verre. Objectif (x10; NA 0.25), impulsions (800 nm, 1 μJ, 160 fs), taux de répétition 200 kHz, vitesse de déplacement 200 μm/s.*

Si la profondeur d'interaction dans le matériau transparent est mal contrôlée, la surface de l'échantillon peut être ablatée si la densité d'énergie à la surface est suffisante.

#### **4.4. Caractérisation des inscriptions**

Ce paragraphe va montrer les résultats des caractérisations réalisées pour l'étude des défauts provoqués par la focalisation de nos impulsions laser femtosecondes dans la silice amorphe. Ces caractérisations vont révéler la présence de deux seuils de dommage. Le premier seuil de dommage a été mentionné au chapitre 3. Il correspond aux premières pertes en transmission du faisceau. Des caractérisations dites "2D" car faites dans le plan (xy) perpendiculaire à l'axe laser z ont été réalisées. Des observations dites "3D" seront également faites en microscopies optique et électronique à balayage (MEB). Nous avons également réalisé des spectres de transmission.

##### **4.4.1. Microscopie optique en lumière polarisée**

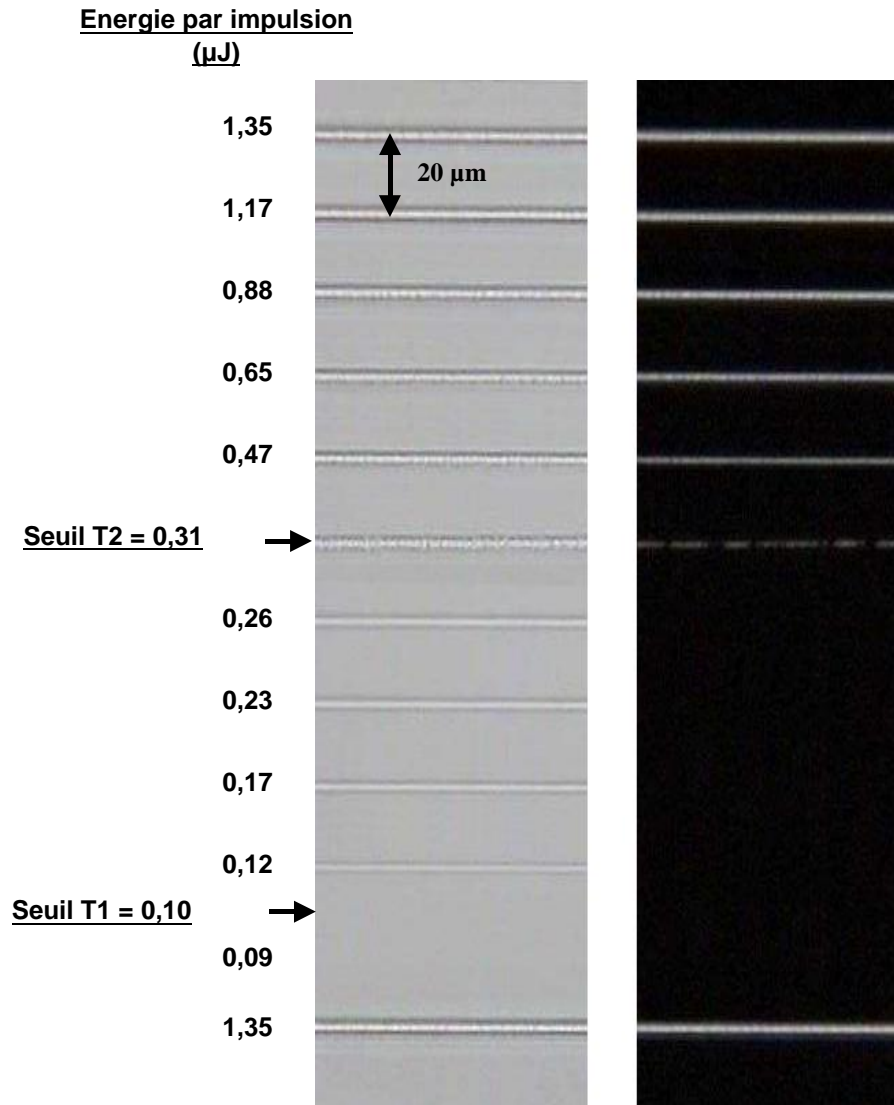
Nous venons de voir au paragraphe précédent qu'il est facile d'examiner les modifications induites dans les verres grâce à un microscope optique. Cette technique permet de voir l'aspect des défauts et donne une bonne idée de leur taille dans le plan (xy) perpendiculaire à l'axe laser. Afin de connaître les seuils de dommage observables de façon macroscopique, j'ai inscrit des lignes en augmentant la puissance laser d'une ligne à l'autre.

La partie gauche de la figure 4.10 montre des lignes inscrites avec des impulsions dont l'énergie varie de 0.09 à 1.35  $\mu\text{J}$ . Cette image a été enregistrée par l'intermédiaire d'un microscope optique. Les premières observations des dégâts induits en faisant varier l'énergie des impulsions semblent indiquer que deux types de dégâts apparaissent. Pour une énergie inférieure à 0.1  $\mu\text{J}$ , la silice n'apparaît pas endommagée. Entre 0.1 et 0.25  $\mu\text{J}$ , les lignes semblent induire de simples modifications de phase. Dès 0.31  $\mu\text{J}$ , les lignes diffusent la lumière. Des micro-fractures semblent alors apparaître dans la silice.

Les faisceaux fournis par nos sources laser sont polarisés linéairement. Or il est connu que l'exposition des fibres optiques aux rayonnements UV induit de la biréfringence. Nous avons donc voulu savoir si des expositions au rayonnement IR peut également induire de la biréfringence dans la silice. Pour cela, j'ai utilisé un système de microscopie en lumière polarisée. L'échantillon est placée entre deux polariseurs croisés. Si l'échantillon est isotrope c'est-à-dire s'il ne possède pas d'axe particulier dans le plan considéré, aucune lumière ne parvient à l'observateur. Dans le cas d'un échantillon biréfringent dont les axes ne sont pas placés parallèlement à l'un des axes des polariseurs, la polarisation linéaire de la lumière après le premier polariseur subit une modification due à la projection sur les axes de la biréfringence. Lorsque cette lumière toujours polarisée linéairement arrive sur le second polariseur, elle ne peut être qu'en partie éliminée. De la lumière parvient alors à l'observateur. Ces observations ont été réalisées à l'aide du microscope optique du Laboratoire de Physico-Chimie de l'Etat Solide de l'université de Paris XI-Orsay.

Les lignes induites dans la silice en faisant varier l'énergie ont été observées par ce système de microscopie en lumière polarisée. Pour cette série d'inscription, la polarisation du laser d'inscription était parallèle au déplacement de l'échantillon dans le plan (xy) donc parallèle aux lignes. Si la polarisation du laser d'inscription est parallèle à l'un des axes des polariseurs, aucune lumière n'est transmise. Par contre, lorsque l'on pivote l'échantillon dans le plan (xy), certaines lignes inscrites apparaissent. Le résultat de cette analyse est montré sur la partie droite de la figure 4.10. L'échantillon est placé de manière à ce que la polarisation du laser d'inscription soit placé à  $45^\circ$  des axes des polariseurs car il s'agit de la position optimale pour la transmission de la lumière. Seules apparaissent les lignes inscrites avec une énergie supérieure au deuxième seuil de dommage. Dans une publication [47], nous avons appelé type I les dommages induits entre les deux seuils et type II les dommages au dessus du second seuil. Les dommages

de type II sont fracturés, diffusants et fortement biréfringents alors que le type I est un dommage moins marqué se comportant comme un changement d'indice.

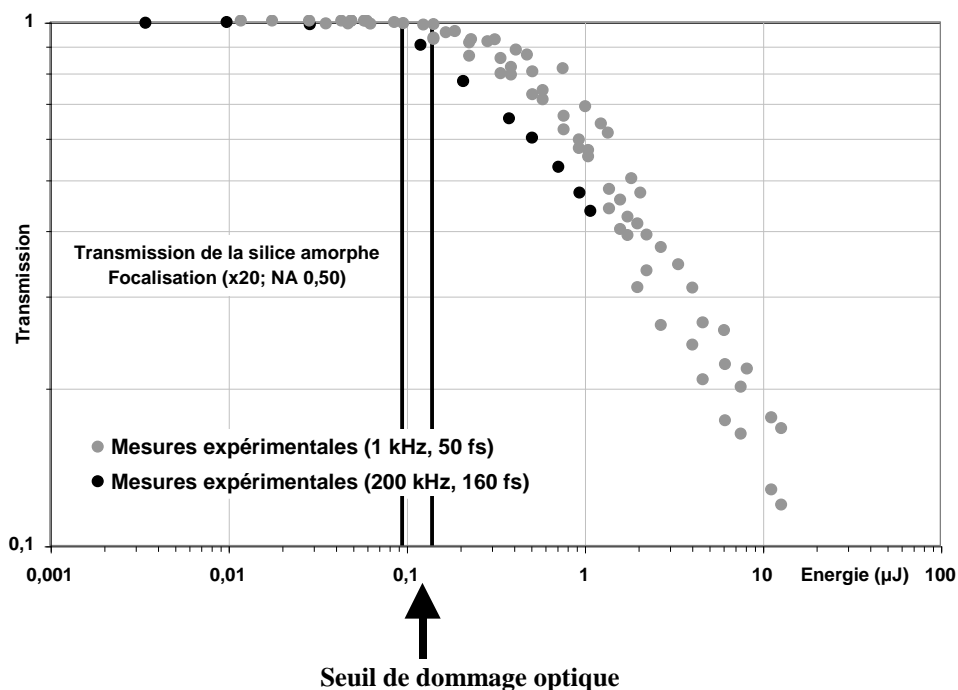


*Figure 4.10 : Partie gauche : observation au microscope optique de lignes de dommages induites par focalisation d'impulsions laser dans un échantillon de silice. Partie droite : même chose mais échantillon entre deux polariseurs croisés et positionnement de la biréfringence à  $45^\circ$  des axes des polariseurs. Chaque ligne induite avec l'énergie indiquée. Objectif (x20; NA 0.50), impulsions (800 nm, 160 fs), taux de répétition 200 kHz, vitesse de déplacement 100  $\mu\text{m/s}$ .*

J'ai également inscrit des dommages de type II en polarisation circulaire. Lorsqu'ils sont observés dans un microscope en lumière polarisée, ils sont visibles quelle que soit leur position par rapport au deux polariseurs croisés.

#### 4.4.2. Comparaison des seuils de dommages avec les courbes de transmission

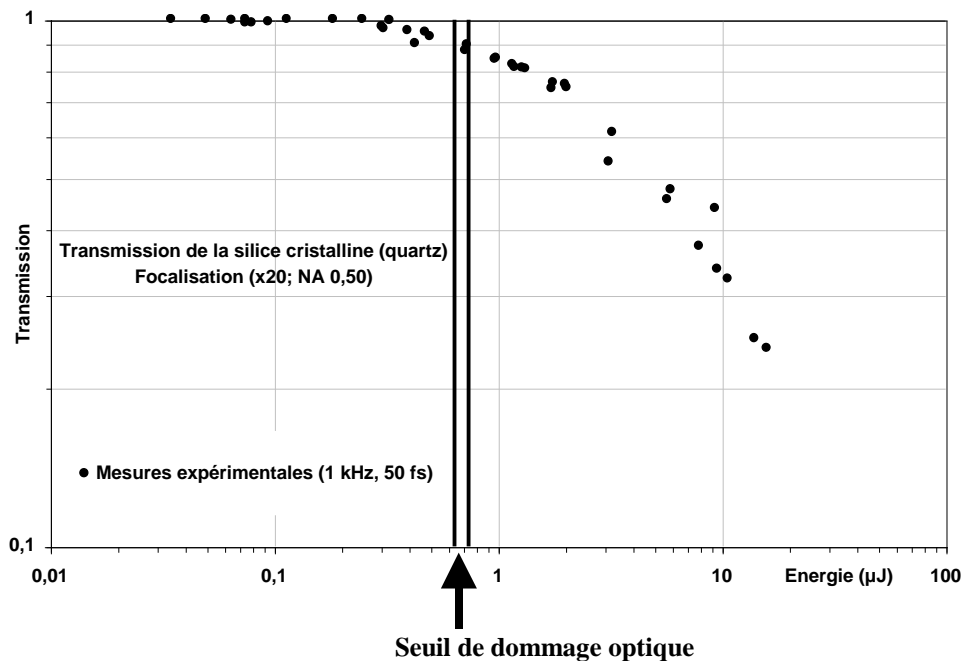
La position du seuil de dommage de type I détectable par microscopie optique dans la silice est encadrée par deux lignes verticales sur la courbe de transmission en fonction de l'énergie incidente de la figure 4.11. Cette courbe a déjà été présentée au chapitre 3. On constate que la chute de la transmission en énergie correspond exactement avec l'apparition des dommages optiques. Avant l'apparition de dommages optiques, la transmission est égale à 1. Il n'y a pas de pertes de transmission avant l'apparition des dommages car les impulsions qui ne sont pas assez énergétiques ne peuvent pas déposer d'énergie dans la silice.



*Figure 4.11* : Transmission en fonction de l'énergie des impulsions femtosecondes d'un laser Ti:Saphir focalisées dans la silice. Les 2 barres noires verticales délimitent la zone d'énergie correspondant au premier seuil de dommage (type I). Focalisation en volume grâce à un objectif (x20; NA 0.50). Impulsions de 50 ou 160 fs.



J'ai également réalisé une étude identique dans le quartz. Pour le quartz, les dommages optiques apparaissent vers  $0.7 \pm 0.05 \mu\text{J}$  mais les pertes de transmission commencent dès  $0.35 \pm 0.05 \mu\text{J}$  comme le montre le graphique de la figure 4.12. Il est possible que cette différence soit due à la nature même du matériau. Le quartz est la forme cristalline de la silice. Il possède une meilleure conductivité thermique qui joue peut-être sur l'apparition des dommages qui ont lieu pour des intensités plus élevées et surtout après le début des pertes de transmission. Il pourrait y avoir des absorptions sans dégât.



*Figure 4.12* : Transmission en fonction de l'énergie des impulsions femtosecondes d'un laser Ti:Saphir focalisées dans le quartz. Les 2 barres noires verticales délimitent la zone d'énergie où apparaissent les dommages optiques. Focalisation en volume grâce à un objectif (x20; NA 0.50). Impulsions de 50 fs.

On note également que le quartz possède un seuil de dommage supérieur à celui de la silice amorphe. Différentes raisons peuvent être avancées comme une bande interdite plus grande pour le quartz ou un indice non-linéaire plus faible ou comme signalé précédemment une évacuation plus rapide de la chaleur.

Contrairement à la silice où j'ai mis en évidence deux types de dommages bien distincts, je n'ai pas observé ce comportement dans le quartz.

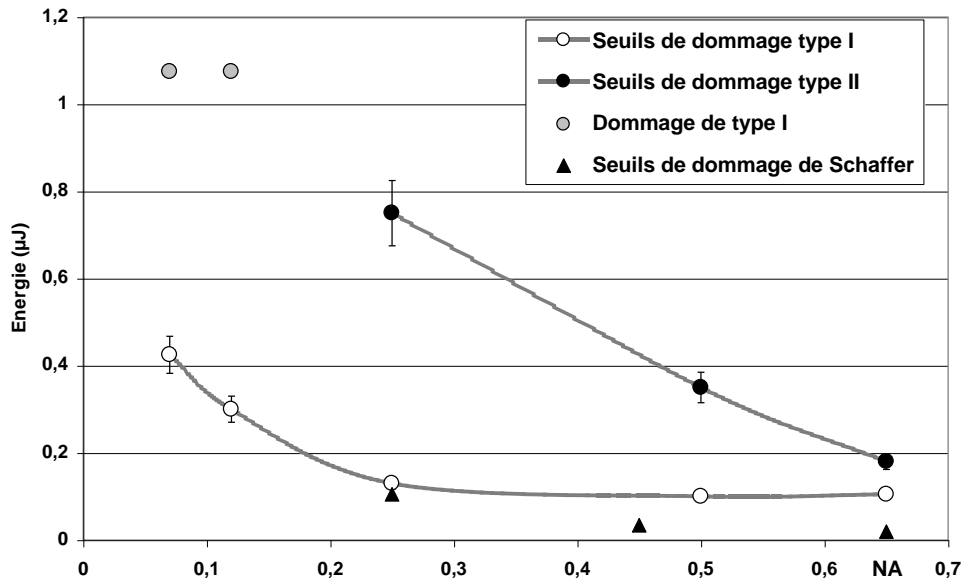
#### **4.4.3. Etude des seuils de dommage en fonction de la focalisation**

J'ai étudié ces deux seuils de dommage en fonction de plusieurs objectifs de grandissement et d'ouverture numérique différents. Afin que l'ouverture numérique du faisceau soit véritablement celle indiquée sur l'objectif, il convient de couvrir entièrement sa pupille d'entrée avec le faisceau laser. Ces expériences d'apparition de seuil de dommage ont été réalisées avec les objectifs réfractifs indiqués par le tableau de la figure 4.13. Une coupe en intensité du foyer de chacun de ces objectifs est donnée en annexe 3.

Grandissement	Ouverture numérique	Waist au foyer dans l'air
X 2,5	0,07	4,81 $\mu\text{m}$
X 4	0,12	3,47 $\mu\text{m}$
X 10	0,25	1,84 $\mu\text{m}$
X 20	0,5	1,06 $\mu\text{m}$
X 40	0,65	0,71 $\mu\text{m}$

*Figure 4.13 : Objectifs utilisés pour focaliser les impulsions laser et mesure du rayon du col au foyer dans l'air.*

Le graphique de la figure 4.14 montre mes résultats expérimentaux ainsi que ceux donnés dans la thèse de Chris B. Schaffer [24].



*Figure 4.14* : Seuils de dommages de type I et type II en fonction de l'ouverture numérique (NA) des objectifs utilisés pour focaliser les impulsions laser.

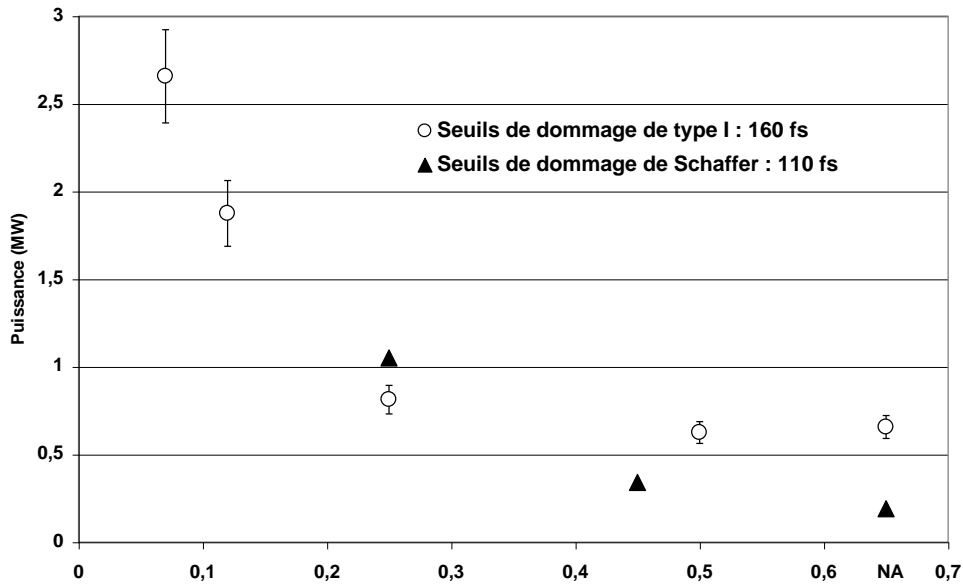
On observe qu'entre les objectifs ayant les ouvertures les plus importantes (0.5 et 0.65), le seuil d'apparition des dommages de type I, est identique. Une hypothèse à ce comportement est la taille des faisceaux proches de la longueur d'onde et donc de la limite de diffraction. L'ajustement gaussien en intensité de la tache après focalisation par l'objectif d'ouverture numérique 0.5 donne un col dans l'air de rayon  $1.06 \mu\text{m}$ . Pour l'objectif d'ouverture 0.65, il est de  $0.71 \mu\text{m}$ . Cependant, la tache laser s'éloigne d'une forme gaussienne, des rebonds autour de la tache principale étant présents comme le montre l'annexe 3.

Il n'a pas été possible d'atteindre le type II avec les objectifs d'ouverture 0.07 et 0.12 avec l'énergie disponible. Le maximum d'énergie utilisé pour ces deux objectifs a cependant induit des modifications de type I. On note que l'écart en énergie entre les deux seuils augmente lorsque l'ouverture numérique diminue.

Nous avons comparé nos expériences avec celles de Chris B. Schaffer [24]. Le graphique de la figure 4.14 donne une comparaison des seuils en énergie et celui de la figure 4.15 donne les seuils en puissance puisque les impulsions que nous avons

utilisées ont une durée de 160 fs alors que celle de Schaffer sont de 110 fs. Pour une ouverture numérique de 0.25, le seuil de dommage de Schaffer est proche de celui que j'ai observé. Par contre, pour des ouvertures numériques supérieures, ses seuils d'endommagement en énergie et en puissance sont inférieurs aux miens. Il y a plusieurs causes possibles à cette différence. La plus évidente est la technique de détection des dommages. Je détermine les seuils de dommage par visualisation post-mortem au microscope optique alors que Schaffer a développé une technique de diffraction en temps réel à l'aide du faisceau d'un laser He-Ne focalisé à l'endroit même de la focalisation des impulsions femtosecondes. Sa technique peut donc être plus sensible que la nôtre. De plus, il précise que cette technique en temps réel lui permet de minimiser les aberrations en jouant sur la profondeur de focalisation. Cet avantage explique ses seuils de dommages inférieurs aux nôtres pour de fortes focalisations. La pureté de la silice fondue utilisée peut également jouer légèrement sur les seuils de dommage. Enfin, il est nécessaire de préciser les conditions expérimentales de production des dommages. Afin de mesurer les seuils de dommage, Schaffer a inscrit des modifications ponctuelles avec 3000 tirs laser. Pour des raisons pratiques, j'ai inscrit des lignes avec un déplacement de 100  $\mu\text{m/s}$  et un taux de répétition de 200 kHz. Dans notre cas, si nous considérons des taches focales de 5 à 10  $\mu\text{m}$ , on peut estimer le nombre de tirs par point élémentaire à 20.000. Cependant, j'ai également travaillé avec des vitesses de 1 mm/s pour un taux de répétition de 100 kHz donnant un nombre de tirs par point de l'ordre de 1000 sans que cela modifie de façon conséquente le seuil de dommage.

Remarquons également que Schaffer n'a pas utilisé de faibles ouvertures numériques pour éviter de travailler au dessus de la puissance critique responsable de l'autofocalisation des impulsions.



*Figure 4.15* : Seuils de dommage en puissance de la silice en fonction de l'ouverture numérique des objectifs utilisés pour focaliser les impulsions laser.

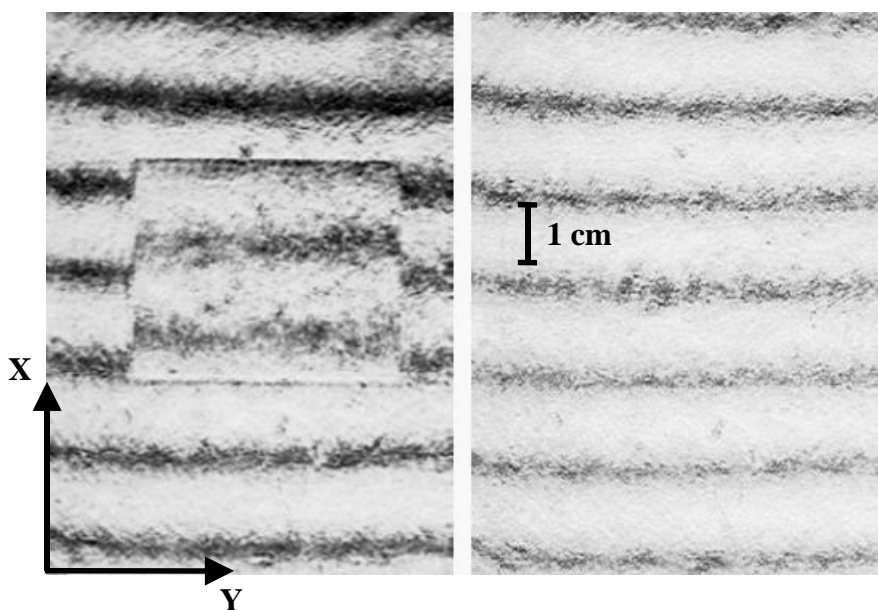
#### **4.4.4. Etude de la biréfringence dans un interféromètre de Michelson**

J'ai réalisé une "couche quasi-homogène" de dommages de 5 x 4 mm dans une lame de silice. Elle a été fabriquée à partir de lignes de 5 mm de long espacées de 1  $\mu\text{m}$  induites grâce à la focalisation par un objectif (x10; NA 0.25) d'impulsions de 1  $\mu\text{J}$  dans la silice. La largeur des lignes étant dans ce cas de 6 à 7  $\mu\text{m}$ , le pas de 1  $\mu\text{m}$  permet d'obtenir une zone de dommages pratiquement uniforme. C'est pour cela que nous appelons ce type d'inscription des "couches quasi-homogènes". Pour que la fabrication ne dure pas plus de quelques heures, la vitesse de déplacement de l'échantillon a été fixée à 1 mm/s plutôt qu'à la vitesse habituellement utilisée de 100  $\mu\text{m/s}$ . La polarisation du laser femtoseconde que j'appellerai "laser d'écriture" est parallèle à l'axe y.

Cette couche quasi-homogène est introduite dans un des deux bras d'un interféromètre de Michelson travaillant en lumière polarisée à 633 nm émise par un laser continu He:Ne. Les observations faites en fonction de la polarisation du laser "de lecture" He:Ne par rapport à la polarisation du laser femtoseconde "d'écriture" ont été enregistrées sur

une caméra et elles sont présentées sur la figure 4.16. Sur l'image de gauche, la polarisation du laser de lecture est parallèle à la polarisation du laser d'écriture. Au centre de l'image on distingue alors la couche grâce au décalage des franges d'interférences qu'elle provoque. Sur l'image de droite, la polarisation du laser de lecture est perpendiculaire à la polarisation du laser d'écriture. Il devient alors impossible d'observer la présence de la couche quasi-homogène.

Le décalage des franges lorsque les polarisations sont perpendiculaires n'est pas détectable alors que lorsque les polarisations sont parallèles il est de  $1/3$  d'interfrange équivalent à 1.05 rad. Cette observation confirme la biréfringence induite dans la silice par la focalisation des impulsions femtosecondes polarisées linéairement.



*Figure 4.16 : Observation dans un interféromètre de Michelson d'une couche de dommages dans la silice fondue induite par focalisation d'impulsions laser. Taille de la couche 5 x 4 mm. Objectif de focalisation ( $\times 10$ ; NA 0.25), impulsions 1  $\mu\text{J}$ , 160 fs, 200 kHz, vitesse de déplacement de l'échantillon 1 mm/s. Image de gauche : polarisation du laser de lecture parallèle à la polarisation du laser d'écriture. Observation d'un décalage des franges d'interférence. Image de droite : polarisations de lecture et d'écriture perpendiculaires. Pas de décalage des franges d'interférence.*

#### **4.4.5. Observations en 3D**

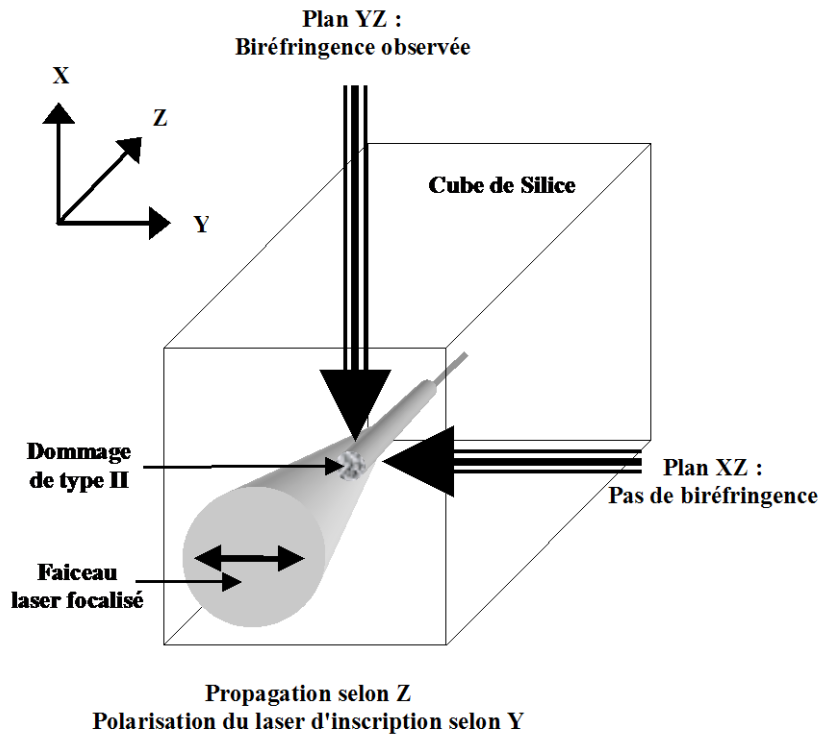
Au chapitre précédent, des images des dommages induits le long de l'axe de propagation laser ont été montrées. Ces images avaient été obtenues à l'aide d'un microscope optique. Nous avons utilisé le recul de ces défauts vers l'objectif lorsque l'énergie augmente pour confirmer le rôle joué par l'effet Kerr optique. Une puissance critique proche de la puissance théorique a pu être tirée de ce traitement.

Un parallèle entre les images faites au microscope électronique à balayage obtenues après clivage d'une lame de silice et la densité électronique a été également réalisé.

##### **4.4.5.1. Etude de la biréfringence**

Ce paragraphe va étudier les dommages le long de l'axe de propagation en lumière polarisée. Cette étude concerne donc uniquement les dommages de type II puisque le type I n'est pas biréfringent. Le schéma de la figure 4.17 montre le principe d'observation des modifications le long de l'axe laser  $z$ . Afin de pouvoir réaliser cette expérience, il est nécessaire que le dégât ponctuel se trouve dans un coin de cube proche des surfaces de l'échantillon pour pouvoir être observé ultérieurement dans les plans  $(xz)$  et  $(yz)$  avec des objectifs de grandissement  $\times 20$  ou  $\times 50$  qui ont des distances de travail réduites. L'échantillon est ensuite placé entre deux polariseurs croisés. La polarisation du faisceau laser d'inscription est parallèle à  $y$ . L'observation du plan  $(yz)$  et la rotation de l'échantillon dans ce plan autour de l'axe  $x$  permettent de distinguer de la lumière lorsque l'axe  $y$  n'est pas parallèle aux axes des polariseurs croisés. On observe donc de la biréfringence dans le plan  $(yz)$  comme dans le plan  $(xy)$ . Si l'on répète l'opération dans le plan  $(xz)$  en tournant l'échantillon autour de l'axe  $y$ , il n'est pas possible d'observer les dommages car aucune lumière n'est transmise. Cela signifie que

les dommages de type II restent isotropes dans le plan (xz). Les dommages de type II créés sont donc de type uniaxe. La biréfringence a donc bien été provoquée par la polarisation du laser incident.



*Figure 4.17 : Principe de l'observation de la biréfringence induite le long de l'axe de propagation laser z. Polarisation du faisceau selon y, biréfringence observée uniquement dans les plans (xy) et (yz).*

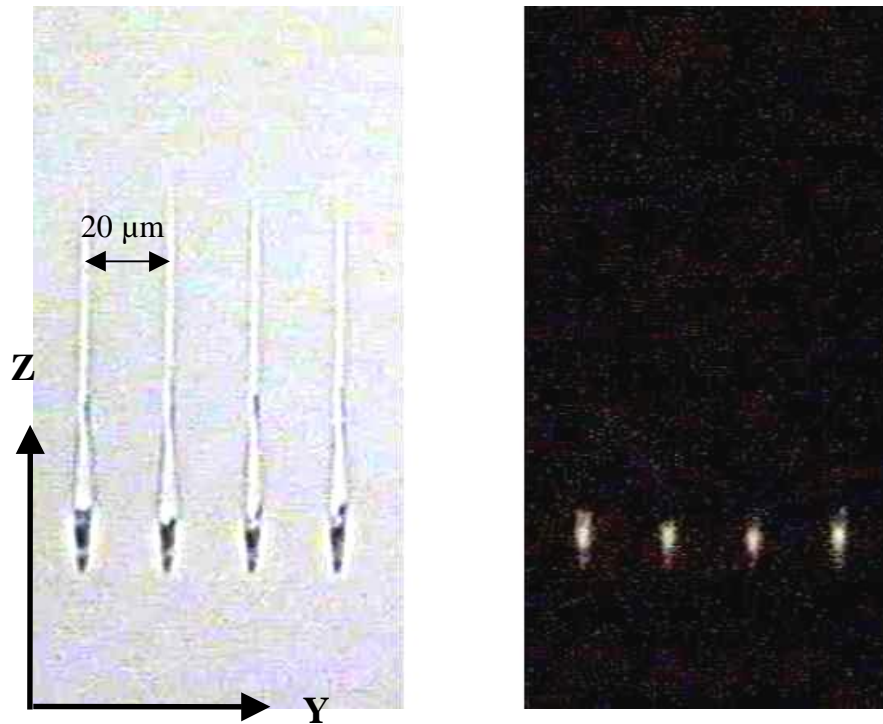
L'image de la figure 4.18 montre une vue des modifications de type II dans le plan (yz). L'image de gauche est la vue au microscope optique classique. Celle de droite est la vue entre polariseurs croisés avec l'axe y à 45° des axes des polariseurs. La forte biréfringence est uniquement présente dans la première partie très fracturée des dommages. La "queue" fine qui suit ces dégâts n'est pas biréfringente.

Il est nécessaire de préciser que dans le cas d'une observation à l'aide d'un microscope optique, la "queue" des dommages ne peut apparaître aussi étroite qu'elle n'est en réalité.

Le système optique d'observation est limité par la diffraction. C'est pour avoir une idée



de la taille de ces modifications que nous avons utilisé un microscope électronique à balayage.



*Figure 4.18 : Partie gauche : observation au microscope optique de 4 dommages ponctuels induits par focalisation d'impulsion laser dans un échantillon de silice. Partie droite : même chose mais échantillon entre deux polariseurs croisés et positionnement de la biréfringence à  $45^\circ$  des axes des polariseurs. Objectif de focalisation ( $\times 20$ ; NA 0.50), impulsions (800 nm, 160 fs, 1  $\mu$ J), taux de répétition 200 kHz, temps d'exposition 2 s.*

#### **4.4.5.2. Microscopie électronique à balayage**

Ce paragraphe concerne l'étude des dommages induits dans la silice grâce à un microscope électronique à balayage (MEB). Le microscope utilisé est celui du laboratoire de mécanique (LME) installé dans les locaux de l'ENSTA à Palaiseau.

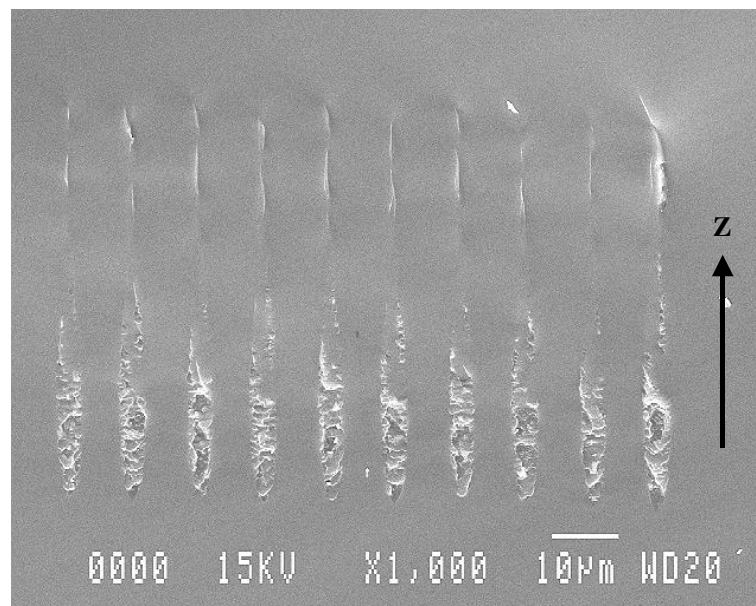
La microscopie électronique à balayage est basée sur l'irradiation de l'échantillon en surface par un faisceau d'électrons. Les électrons secondaires réémis sont collectés pour

donner une image de la surface. Le spot du canon à électron très fin permet d'observer des détails inférieurs à 10 nm . Ce spot balaie la surface à imager. Cette technique ne permet pas de pénétrer dans les matériaux. Pour étudier la très petite taille transverse des dommages induits par le faisceau laser, nous avons exposé une lame mince de silice de 500  $\mu\text{m}$  d'épaisseur afin de pouvoir réaliser aisément un clivage. Des lignes parallèles de plusieurs millimètres de long ont été inscrites à une profondeur de 250  $\mu\text{m}$ . Le clivage a été réalisé perpendiculairement à ces lignes. Pour que l'imagerie soit possible il est nécessaire que le matériau bombardé soit conducteur pour l'évacuation des charges qui pourraient rendre instable le faisceau d'électrons au niveau de la surface. La silice est un isolant. Les tranches de l'échantillon clivé ont donc été recouvertes d'un film d'or très mince déposé par évaporation thermique. L'image de la figure 4.20 montre des dégâts induits par des impulsions de 1.1  $\mu\text{J}$  focalisées par un objectif (x20, NA 0.50).

La longueur totale des défauts augmente avec l'énergie incidente. Elle peut atteindre 80  $\mu\text{m}$  pour une énergie de 1.1  $\mu\text{J}$  focalisée avec l'objectif (x20; NA 0.50). Les dégâts sont donc de 20 à 30 fois plus longs que la longueur de Rayleigh qui, dans ce cas, est de l'ordre de 3 à 4  $\mu\text{m}$ . Ceci s'explique par les phénomènes non-linéaires qui ont lieu au cours de la propagation des impulsions. Les études expérimentales et numériques relatives à la propagation exposées au chapitre 3 expliquent bien la forme de ces dégâts. En raison de la longueur des modifications nous les désignerons par la suite par les termes de dommages "filamentés".

La taille transverse de la "queue" de dommages de type II est inférieure à 300 nm. Cette dimension est inférieure à la limite de diffraction du faisceau laser dont la longueur d'onde est centrée autour de 800 nm. Cette petite taille peut s'expliquer par le fait que les dégâts sont créés par des absorptions multiphotoniques à seuil. Il est donc possible que, lorsque la densité d'énergie est juste supérieure au seuil de dommage, seul le

maximum spatio-temporel de l'impulsion induise des modifications qui peuvent alors être très fines et bien entendu inférieures à la limite de diffraction en accord avec la littérature [23, 24, 34, 35]. Ce type de dommages de dimensions inférieures à la longueur d'onde n'est pas possible dans le cas des modifications induites par laser UV dans les fibres optiques qui ne sont pas transparentes à ce type de rayonnement très énergétique.



*Figure 4.20* : Observation au microscope électronique à balayage de dommages induits par focalisation d'impulsions laser dans un échantillon de silice. Objectif de focalisation ( $\times 20$ ; NA 0.50), impulsions 1.1  $\mu\text{J}$ , 160 fs.

Il est intéressant de noter que des travaux récents font état de dommages pouvant ressembler au type II que nous observons. Il n'est pas fait mention de la biréfringence mais Ashkenasi et al. [48] montrent des dommages filamentés faisant penser à la première zone très fracturée de nos dégâts de type II. Yamada et al [49] ont obtenu des structures "granuleuses" qui apparaissent pour des énergies légèrement supérieures à celles nécessaires pour induire des modifications permettant de fabriquer des guides d'onde.

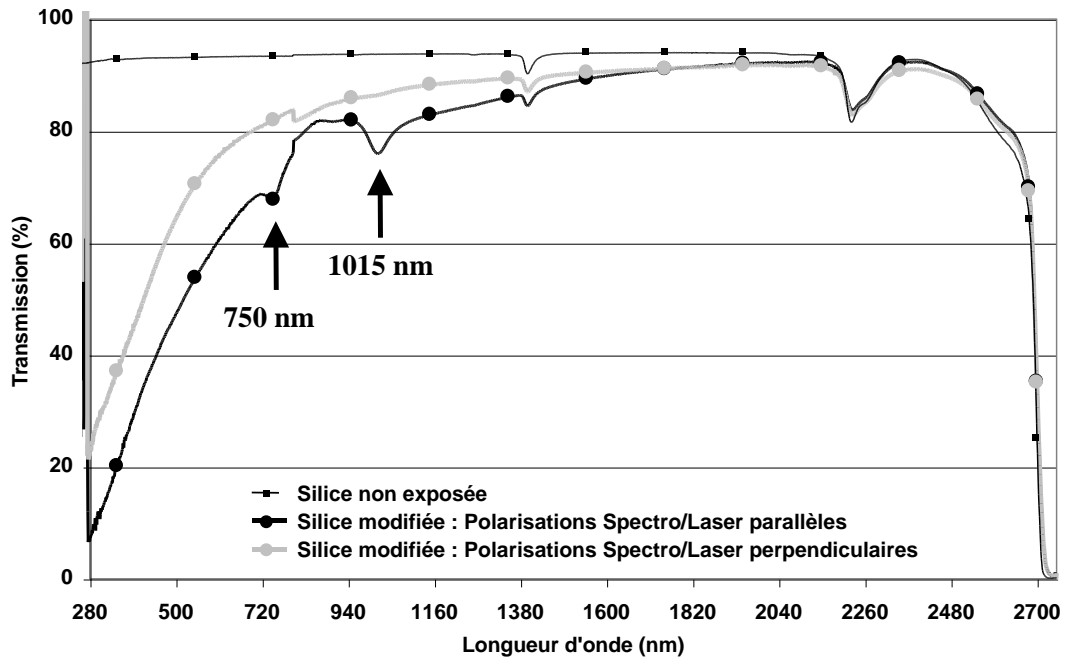
#### **4.4.6. Spectroscopie**

Les défauts dans un matériau peuvent être caractérisés par des raies d'absorption. Afin de voir si les modifications créées dans la silice correspondent à des défauts connus nous avons réalisé des spectres de transmission des dommages.

Pour que l'étude soit aisée, j'ai étudié la transmission d'une "couche quasi-homogène" de défauts. Cette couche quasi-homogène de 5x4 mm est celle déjà étudiée dans l'interféromètre de Michelson. Je rappelle qu'elle a été fabriquée à partir de lignes espacées de 1  $\mu\text{m}$  induites grâce à la focalisation par un objectif (x10; NA 0.25) d'impulsions de 1  $\mu\text{J}$  dans la silice. La largeur des lignes étant dans ce cas de 6 à 7  $\mu\text{m}$ , le pas de 1  $\mu\text{m}$  permet d'obtenir une zone de dégâts pratiquement uniforme. Former une grande zone de dommages afin de réaliser une étude spectroscopique a également été fait par Efimov et al. [46].

Deux spectrophotomètres ont été employés pour cette étude afin de pouvoir recouper les résultats. Le premier spectromètre couvre une gamme en longueur d'onde de 190 à 1100 nm. Le second possède une gamme plus large allant de 200 à 2750 nm. Ce spectromètre appartient au Laboratoire d'Optique des Solides de l'Université Pierre et Marie Curie. Il donne la possibilité de travailler avec un système de détection supplémentaire appelé "sphère intégrante" qui permet de recueillir toute la lumière transmise qu'elle soit transmise directement, diffusée ou diffractée.

La figure 4.20 montre les spectres de transmission de la silice avant exposition au laser et après exposition. Nous avons vu que les dommages induits dans la silice sont biréfringents. J'ai donc étudié le spectre de transmission d'une couche quasi-homogène en lumière polarisée.



*Figure 4.20 : Spectres de transmission en lumière polarisée d'une couche quasi-homogène de dommages de type II.*

La silice non exposée donne le même spectre de transmission quelle que soit la polarisation puisqu'elle est isotrope. On reconnaît trois absorptions caractéristiques de la présence d'hydrogène dans  $\text{SiO}_2$  sous la forme de liaisons O-H [50]. Ce spectre de la silice confirme ce que nous avons annoncé dès le début de ce manuscrit : la silice est transparente à 800 nm qui est la longueur d'onde laser fournie par les sources Titane-Saphir que nous utilisons.

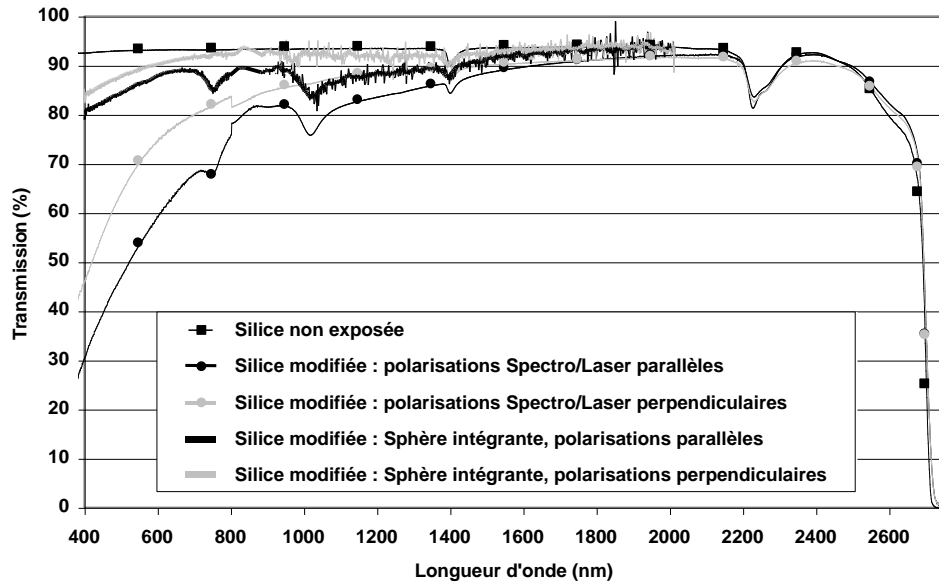
Les deux spectres de la zone exposée montrent des pertes de transmission pour des longueurs d'onde inférieures à 2000 nm. Cette pertes augmentent lorsque la longueur d'onde décroît. Elles atteignent 80 à 90 % à 280 nm.

Lorsque la polarisation de la lumière du spectrophotomètre est parallèle à la polarisation du laser d'inscription, deux raies apparaissent à  $750 \pm 10$  nm et  $1015 \pm 10$  nm. Ces deux raies ne sont pas présentes lorsque les deux polarisations sont perpendiculaires. On pouvait s'attendre à des différences de ce type. La relation de Kramers-Kronig lie en effet les modifications de l'indice de réfraction à des modifications d'absorption. Malgré

de nombreux contacts avec des spécialistes des défauts dans la silice, ces deux raies n'ont pu être attribuées à des défauts connus.

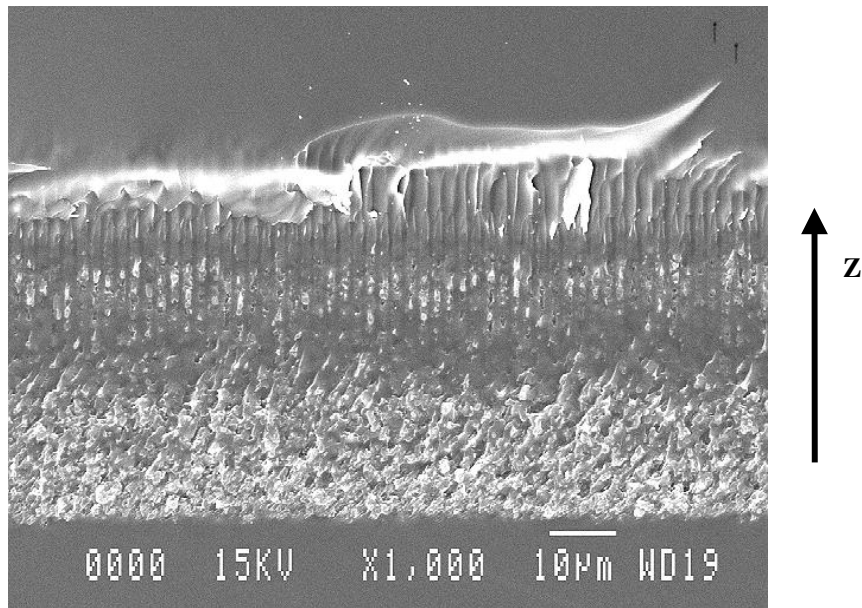
Les spectres de la zone exposée montrent de très fortes pertes de transmission dans le visible et l'UV. Or la silice exposée n'apparaît pas sombre à l'œil nu. Cette chute de transmission dans le visible et l'UV ne semble donc pas pouvoir être uniquement due à des pertes par absorption. Nous avons notamment signalé que les dommages de type II apparaissent comme légèrement diffusant.

Nous avons alors utilisé la technique de la sphère intégrante afin de recueillir le maximum de lumière transmise. La figure 4.21 montre les spectres en lumière polarisée de la zone exposée au laser. Les deux raies d'absorption sont toujours présentes lorsque la polarisation du spectrophotomètre est parallèle à la polarisation du laser d'inscription et elles n'apparaissent pas lorsque les polarisations sont perpendiculaires. Le principal changement apporté par l'utilisation de la détection par la sphère intégrante est la forte augmentation de la transmission dans le visible. La majeure partie des fortes pertes de transmission observées avec une détection classique n'est donc pas due à de l'absorption par les défauts induits par le laser. Il y a cependant une absorption dans l'UV. Cela est la signature de la présence de défauts permanents induits dans la silice. Ces défauts créent des niveaux intermédiaires dans la bande interdite de la silice pure. La silice exposée devient alors moins transparente dans l'UV.



*Figure 4.21* : Spectres de transmission en lumière polarisée d'une couche quasi-homogène de dommages de type II. Utilisation de la sphère intégrante comme système de détection.

La zone exposée au laser est constituée de lignes parallèles séparées de 1  $\mu\text{m}$ . Si les dommages se recouvrent au niveau de la partie fracturée, biréfringente et diffusante, nous avons observé grâce au microscope à balayage que la "queue des dégâts filamentés" est inférieure à 300 nm. Le pas entre les lignes constituant cette couche quasi-homogène étant de 1  $\mu\text{m}$ , la queue de chaque ligne est séparée des deux défauts voisins. Nous avons réalisé des images au MEB, d'une couche quasi-homogène en utilisant le même principe de clivage que précédemment (figure 4.22). La première partie de dommage longue de 15 à 20  $\mu\text{m}$  et la deuxième moins marquée longue d'une dizaine de microns n'ont pas de structure. Par contre, la troisième partie longue de 30  $\mu\text{m}$  qui apparaît très fine sur les observations de lignes séparées donne une structure de pas 1  $\mu\text{m}$ . Ce type de couche quasi-homogène initialement prévue pour réaliser de grandes surfaces de dommages faciles à étudier en spectroscopie s'avère donc posséder une structure de type réseau.



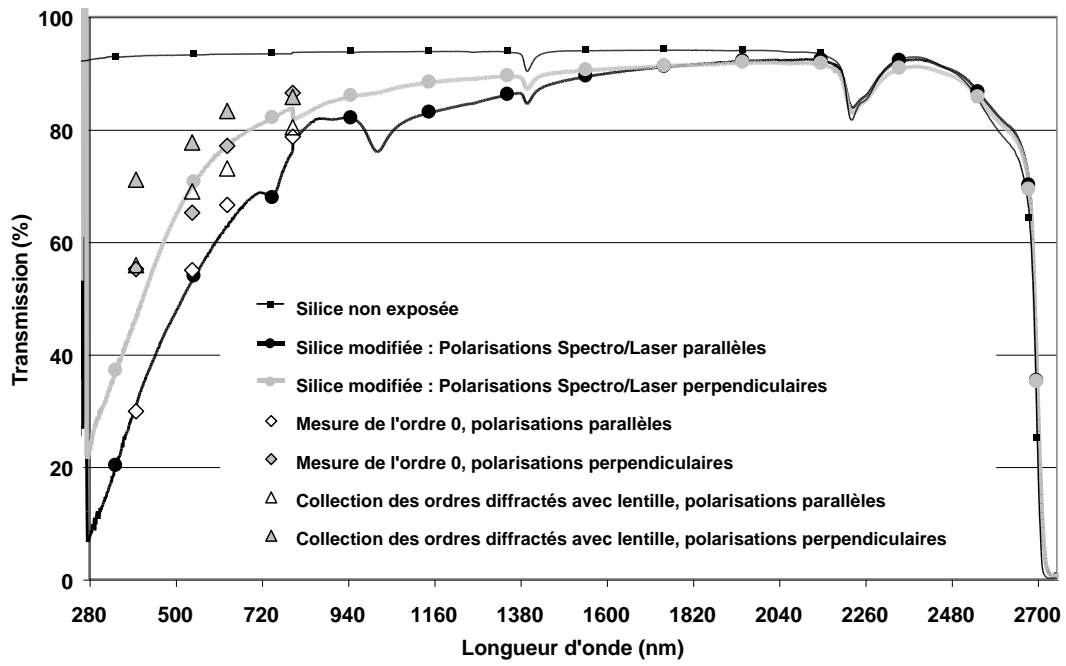
*Figure 4.22 : Observation au MEB d'une couche quasi-homogène de dommages de type II le long de l'axe de propagation laser z.*

J'ai étudié la diffraction de ce type de structures en fonction de la longueur d'onde et de la polarisation incidente. Pour réaliser cette étude j'ai utilisé deux lasers He-Ne continus à 543 et 633 nm ainsi que le faisceau du laser Titane-saphir à 800 nm et son deuxième harmonique à 400 nm produit grâce à un cristal de KDP. J'ai observé des ordres secondaires diffractés par la couche quasi-homogène dont les angles de diffraction correspondent au pas entre les lignes. La mesure de la puissance présente dans l'ordre zéro en fonction de la polarisation incidente est reportée sur les spectres de transmission à la figure 4.23. Les résultats de ces mesures sont très proches des spectres de transmission. On remarque que l'efficacité de diffraction de ce réseau de pas  $1\ \mu\text{m}$  augmente lorsque la longueur d'onde diminue. Une telle couche quasi-homogène s'avère être un réseau de diffraction très efficace dans l'UV. Les longueurs d'onde supérieures à  $1\ \mu\text{m}$  ne voient pas le réseau. Elles ne connaissent alors pas de pertes par diffraction.

Une lentille de grande ouverture numérique placée après l'échantillon recueille la majeure partie des ordres de diffraction. Ces mesures sont à nouveau placées sur le même graphique que les spectres de transmission (figure 4.23). La somme de ces ordres



diffractions ne permet pas d'atteindre la transmission mesurée grâce à la détection utilisant la sphère intégrante. La différence entre ces deux niveaux de transmission donne la proportion de lumière diffusée en fonction de la longueur d'onde.



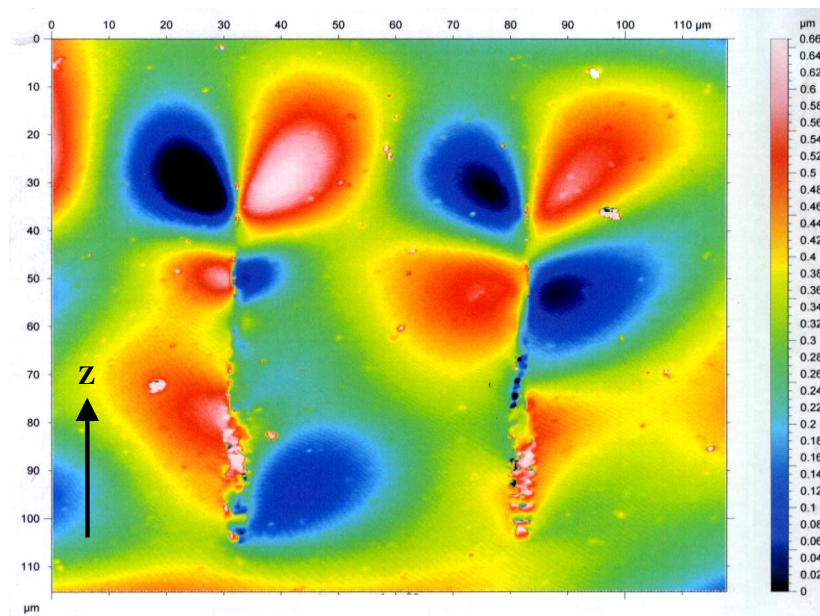
*Figure 4.23 : Comparaison de mesures des ordres diffractés avec les spectres de transmission d'une couche quasi-homogène de dommages de type II.*

#### **4.4.7. Interférométrie en lumière blanche**

Le clivage d'échantillons de silice a montré dans le passé que cette méthode permet de mettre en évidence le champ de contraintes à l'endroit de la cassure [51]. De manière à détecter d'éventuelles traces de densification, nous avons pratiqué des observations de topographie de surface d'échantillons clivés à l'endroit des irradiations. L'outil de mesure est un interféromètre à décalage de phase fonctionnant en lumière blanche. Il permet une mesure des variations de hauteur de 30  $\mu\text{m}$  avec une sensibilité de l'ordre du nanomètre. Le principe de l'interférométrie en lumière blanche est le suivant : la lumière blanche produite par une lampe est divisée en deux faisceaux par une lame séparatrice placée dans l'objectif. Une partie de la lumière est dirigée directement sur une caméra alors que l'autre est réfléchiée par la surface de l'échantillon. Des interférences entre les deux faisceaux se forment alors au niveau de la caméra. L'échantillon est déplacé de façon très précise verticalement d'une hauteur de l'ordre de 30  $\mu\text{m}$  pendant que 256 images sont enregistrées. La cartographie de la surface de l'échantillon est réalisée point par point avec une résolution d'environ 1  $\mu\text{m}^2$  grâce à la mesure des variations de l'enveloppe de l'interférogramme en lumière blanche. L'appareillage nécessaire à cette analyse est situé au Laboratoire de Physico-Chimie de l'Etat Solide de l'université de Paris XI à Orsay.

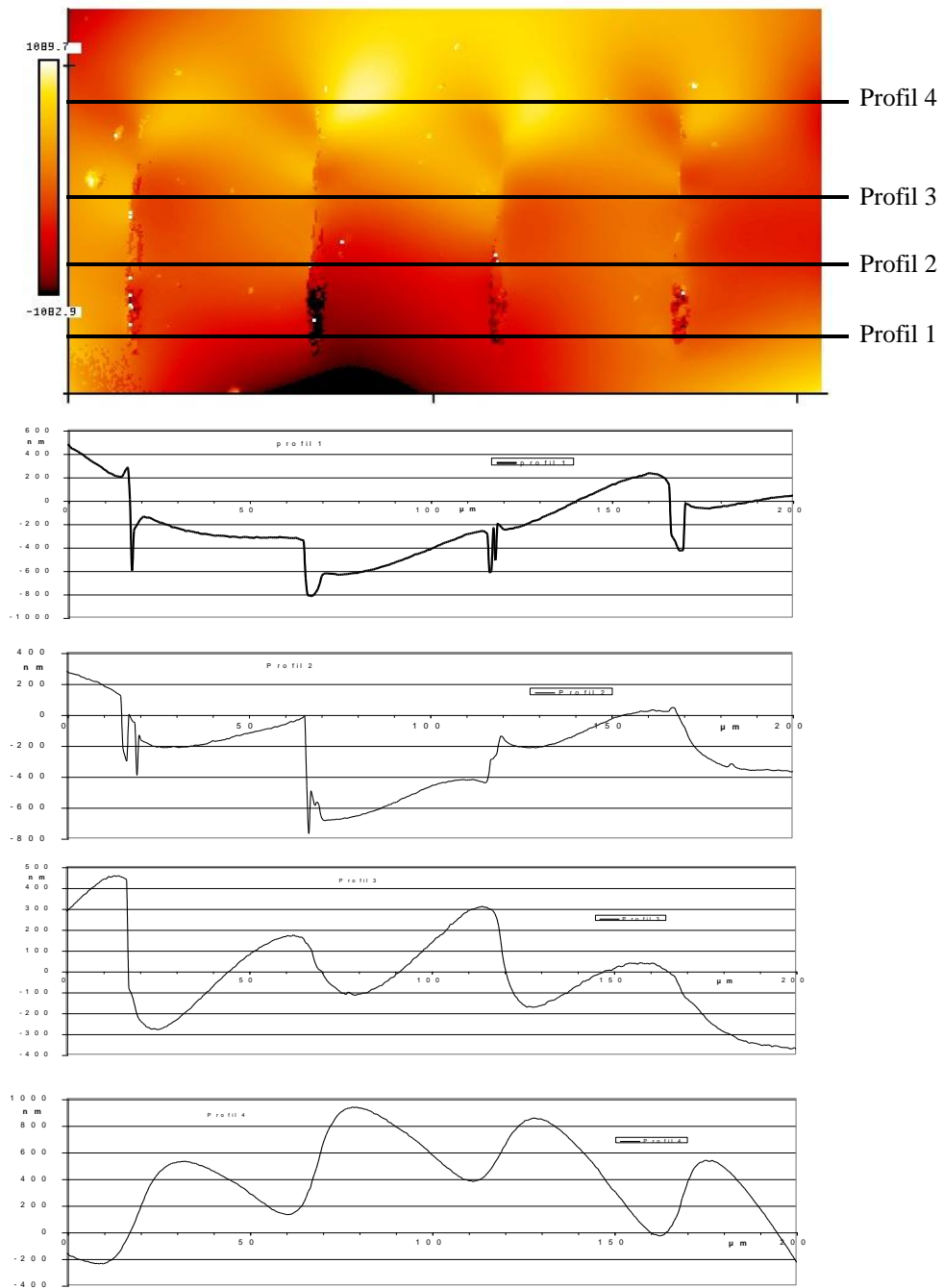
Nous avons examiné la tranche des échantillons clivés utilisés auparavant pour les analyses en microscopie électronique à balayage. La figure 4.24 montre la topographie de la surface clivée à l'endroit de deux dommages de type II le long de l'axe z de propagation du laser. L'échelle de couleur a été choisie afin de mettre en évidence les proéminences en rouge et les creux en bleu. Ces dommages correspondent en fait à une section transverse de deux lignes inscrites en déplaçant l'échantillon selon l'axe (oy) pour la première et dans le sens inverse pour la seconde. Sur chacune de ces deux traces

on reconnaît la première partie fortement endommagée avec des oscillations de couleur importantes et on distingue la "queue" plus fine et moins tourmentée. L'observation des changements de couleur d'un côté par rapport à l'autre de la traces révèle des contraintes provoquées dans le matériau par la propagation de l'énergie lumineuse. On peut dire que ce sont des cisaillements dans la direction (oy) car le déplacement de la surface s'inverse par rapport à la trace. On remarque également que ces cisaillement s'inversent le long de la propagation. Enfin, on voit que le sens du déplacement du laser dans l'échantillon n'est pas indifférent puisque le dommage de gauche possède en tête un renflement à sa gauche et un creux à droite alors que c'est l'inverse pour celui de droite. Par contre, au niveau de la "queue" des dommages, les cisaillements sont identiques et donc indépendants du sens du déplacement du laser dans l'échantillon. Enfin, l'observation de l'autre moitié du clivage montre une topographie complémentaires mettant en évidence l'absence de densification de plus de  $5.10^{-3}$  environ suivant (oy). On ne peut cependant rien dire pour les directions (oz) et (ox) si celle –ci est fortement anisotrope.

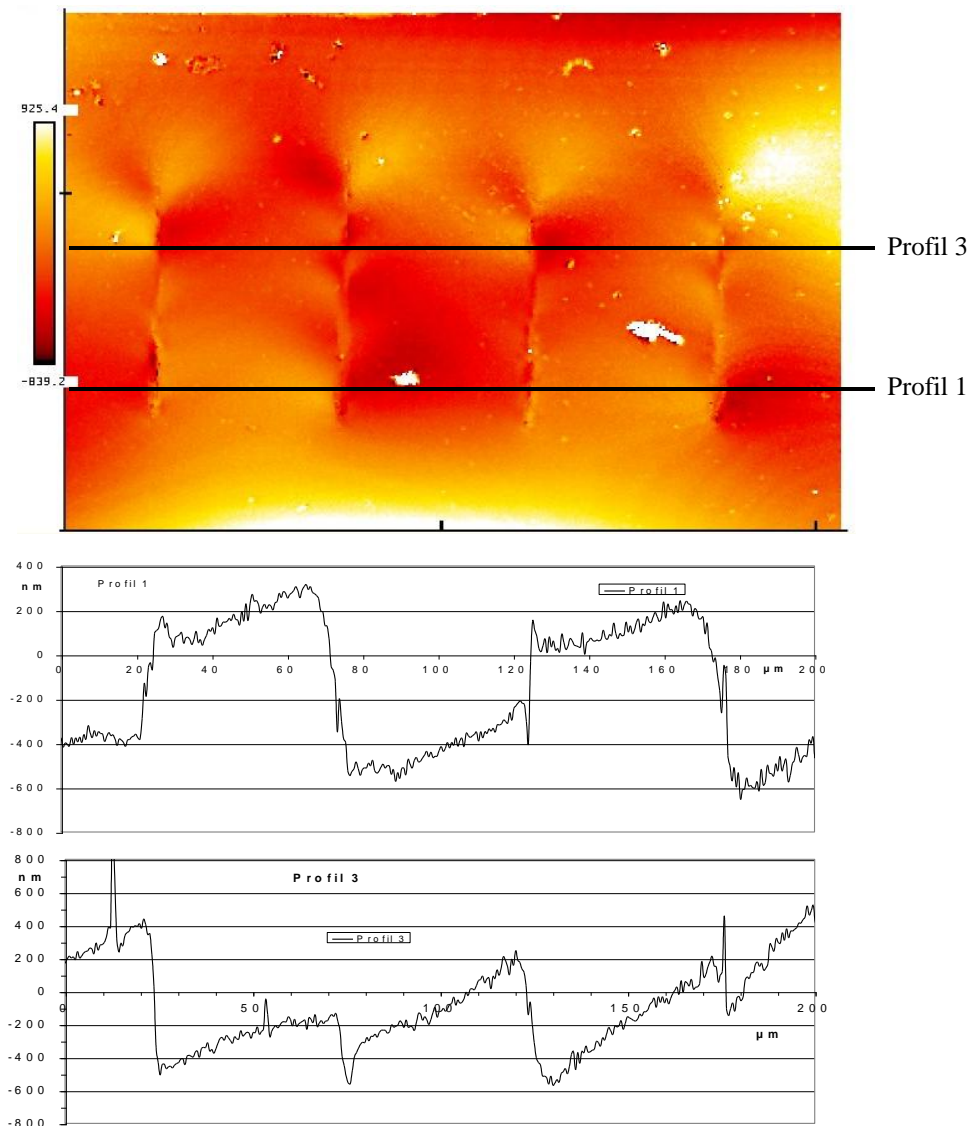


*Figure 4.24 : Cartographie réalisée au microscope interférométrique en lumière blanche après clivage d'une lame de silice. Dommages de type II induits par focalisation d'impulsions laser (800 nm, 1  $\mu$ J, 160 fs, 100 kHz). Objectif de focalisation (x20; NA 0.50).*

La figure 4.25 montre le profil de surface à l'endroit des dommages pour différentes positions le long de  $z$ . Le code des couleurs est dans ce cas progressif du rouge (-) au jaune (+). Les profils 1 et 2 qui sont placés au niveau de l'endommagement principal (en tête) sont très abruptes alors que les profils 3 et 4 qui sont au niveau de la queue sont plutôt doux. On remarque l'inversion de pente entre les profils 3 et 4. Pour le profil 3, le renflement est à gauche du dommage. Pour le profil 4 il est à droite. Pour les profils 1 et 2 il y a alternance du sens de la discontinuité pouvant être corrélé avec le passage du laser dans un sens ou dans l'autre. Cette observation est plus nette sur la figure 4.26 pour laquelle la polarisation du laser d'inscription était selon (ox) c'est-à-dire perpendiculaire au déplacement. On observe cette fois sans ambiguïté la différence entre "l'aller" et "le retour" de l'écriture. En tête des dommages, le pas est double ( $100\ \mu\text{m}$ ) alors qu'il est simple ( $50\ \mu\text{m}$ ) au niveau de la queue. Il existe donc un processus d'interaction sensible à la direction d'écriture en tête de la trace alors qu'il ne l'est pas en queue. Par ailleurs, la polarisation du laser semble être un facteur déterminant. Ces observations montrent une chiralité imprimée dans le matériau. En effet, l'image symétrique dans un miroir n'est pas superposable. De nombreuses questions restent alors sans réponse si le sens du déplacement détermine le sens du cisaillement, la vitesse doit avoir un effet et l'immobilité doit conduire à sa suppression. Ce n'est pas le cas au niveau de la queue des traces où la chiralité est indépendante du sens du déplacement. Elle ne semble pas non plus dépendre de la puissance laser. On observe que le cisaillement change de sens le long de la trace. Il ne peut alors s'agir d'une torsion le long de l'axe de propagation mais plutôt d'une oscillation de torsion. Ce processus est à rapprocher de la brisure de symétrie produite par l'interférence de deux ondes dans un effet photogalvanique non-linéaire. L'interaction d'un champ à la pulsation  $\omega$  avec un autre à  $3\omega$  ou un autre mélange d'onde cohérent en relation de phase peut conduire à la création d'un champ statique dont la direction est définie par le déphasage des champs.



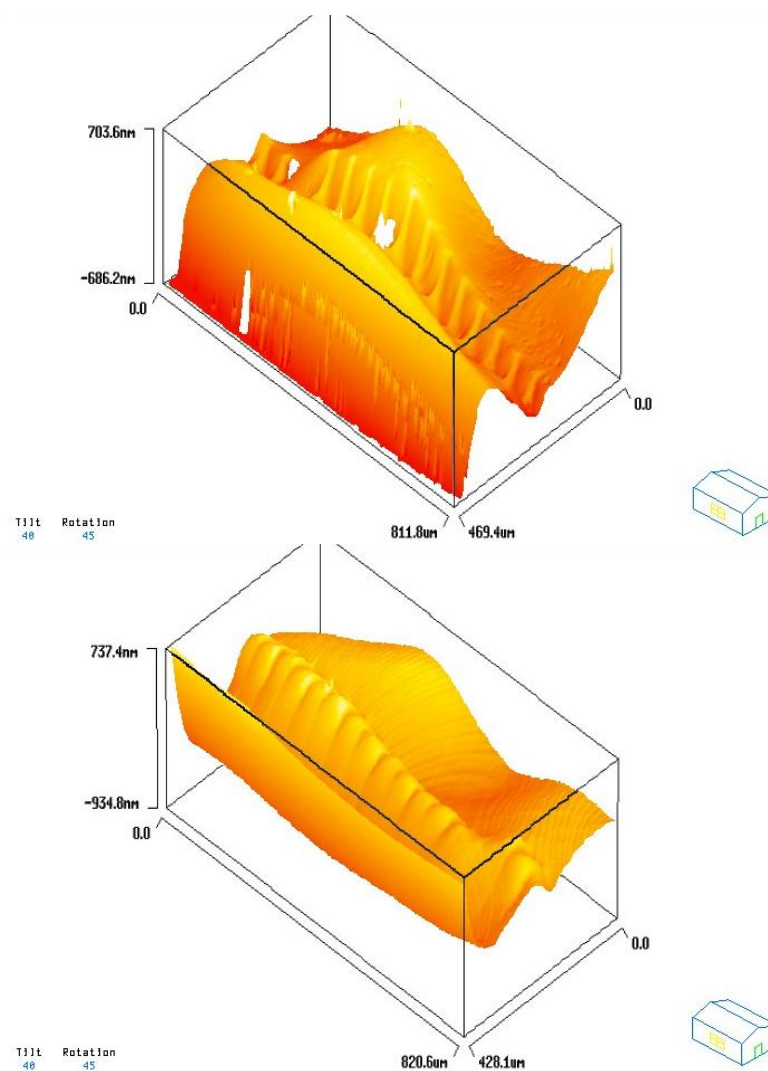
*Figure 4.25 : Cartographie et profils réalisés au microscope interférométrique en lumière blanche après clivage d'une lame de silice. Dommages de type II induits par focalisation d'impulsions laser (800 nm, 1 μJ, 160 fs, 100 kHz). Objectif de focalisation (x20; NA 0.50). Profils enregistrés comme indiqués sur l'image du haut.*



*Figure 4.26 : Cartographie et profils réalisés au microscope interférométrique en lumière blanche après clivage d'une lame de silice. Dommages de type II induits par focalisation d'impulsions laser (800 nm, 1  $\mu$ J, 160 fs, 100 kHz). Objectif de focalisation (x20; NA 0.50). Profils enregistrés comme indiqués sur l'image du haut.*

Les deux vues en trois dimensions de la figure 4.27 montrent les deux côtés opposés d'un échantillon de silice après clivage dans lequel j'ai induit des dommages de type I. Ils ont été induits par focalisation à travers un objectif (x2.5, NA 0.07). Sur la figure du haut, on observe une vallée d'effondrement général et un renflement au niveau de chaque dommage de type I. Par contre, l'image du bas est le complémentaire exact c'est-

à-dire qu'il y a des creux au niveau des dommages et un renflement général au niveau de l'ensemble des dommages. Comme pour les dommages de type II, les contraintes présentes avec les dommages de type I dans la silice sont donc principalement des cisaillements le long de la trace et non perpendiculairement. En effet, il s'agissait de densification, les deux côtés du clivages seraient identiques. Il semble donc que nous n'observons pas la densification caractérisée par Miura et al [36-38]. S'il y a densification, il ne s'agit pas de l'effet principal.



*Figure 4.27 : Vue 3D d'une cartographie des deux faces opposées réalisée au microscope interférométrique en lumière blanche après clivage d'une lame de silice. Dommages de type I induits par focalisation d'impulsions laser (800 nm, 1  $\mu$ J, 160 fs, 100 kHz). Objectif de focalisation (x2.5; NA 0.07).*

Les images de la figure 4.27 ne présentent pas de chiralité à cette échelle mais une trace à plus fort grossissement montrant la présence de cisaillements le long des traces.

L'effet du sens du déplacement sur les contraintes dans la silice a également une influence sur la diffraction des réseaux en transmission fabriqués à partir de traits induits alternativement en déplaçant l'échantillon selon (oy) puis selon (-oy). Les ordres de diffraction de ce type de réseau correspondent à un pas simple mais des ordres peu intenses qui correspondent à un pas double viennent s'intercaler. Je me suis affranchi de ce comportement soit en inscrivant des traits en déplaçant l'échantillon dans un seul sens soit en exposant chaque trait à un "aller" puis à un "retour".



## **4.5. Etudes physiques complémentaires**

### **4.5.1. Seuils d'endommagement et effets thermiques**

Au chapitre 2, j'ai spécifié que la longue filamentation à travers 2 cm de silice reste stable si l'échantillon est déplacé en continu dans le plan perpendiculaire à l'axe laser alors qu'il est possible de laisser l'échantillon de quartz immobile pendant quelques minutes sans que le filament en soit affecté. Le quartz cristallin a une meilleure conductivité thermique que la silice amorphe. On peut donc penser que le taux de répétition élevé de notre laser (100-200 kHz) ne permet pas à la silice d'évacuer tout l'apport d'énergie entre deux impulsions alors que le quartz qui se refroidit plus vite est moins sensible à cet aspect. La température locale le long de la propagation laser augmente moins rapidement dans le quartz. Il devient alors évident que le déclin du filament lorsque l'échantillon reste immobile provient d'un échauffement local dû à des effets d'accumulation thermique. Des effets thermiques qui augmentent avec le temps d'exposition ont également été signalés par Yamada et al. [49]. Schaffer et al. [23, 24] font aussi état de défauts liés à des accumulations thermiques dues au fort taux de répétition qu'ils utilisent.

J'ai étudié le seuil d'apparition des dommages de type II dans la silice amorphe avec différents taux de répétition laser mais avec le même objectif de focalisation (x20; NA 0.50). J'ai utilisé le laser RegA décrit précédemment à 100 et 200 kHz (800 nm, 160 fs) ainsi que le laser à 1 kHz (800 nm, 50 fs) et un laser à 5 Hz (800 nm, 130 fs). Les résultats sur l'apparition du dommage de type II sont résumés ci-après :

- laser RegA : 100 et 200 kHz, 160 fs, vitesse de déplacement 100  $\mu\text{m/s}$   
 $0.25 \mu\text{J} < \text{seuil type II} < 0.31 \mu\text{J}$  par impulsion
- laser 1 kHz, 50 fs, vitesse de déplacement 1  $\mu\text{m/s}$   
 $0.6 \mu\text{J} < \text{seuil type II} < 0.7 \mu\text{J}$  par impulsion
- laser 5 Hz, 130 fs :
  - temps d'exposition de 60 s soit 300 impulsions avec 1  $\mu\text{J}$  : type II
  - temps d'exposition de 10 s soit 50 impulsions avec 1  $\mu\text{J}$  : type I
  - 1 seule impulsion de 2.2  $\mu\text{J}$  : type I
  - 1 seule impulsion de 15  $\mu\text{J}$  : type I

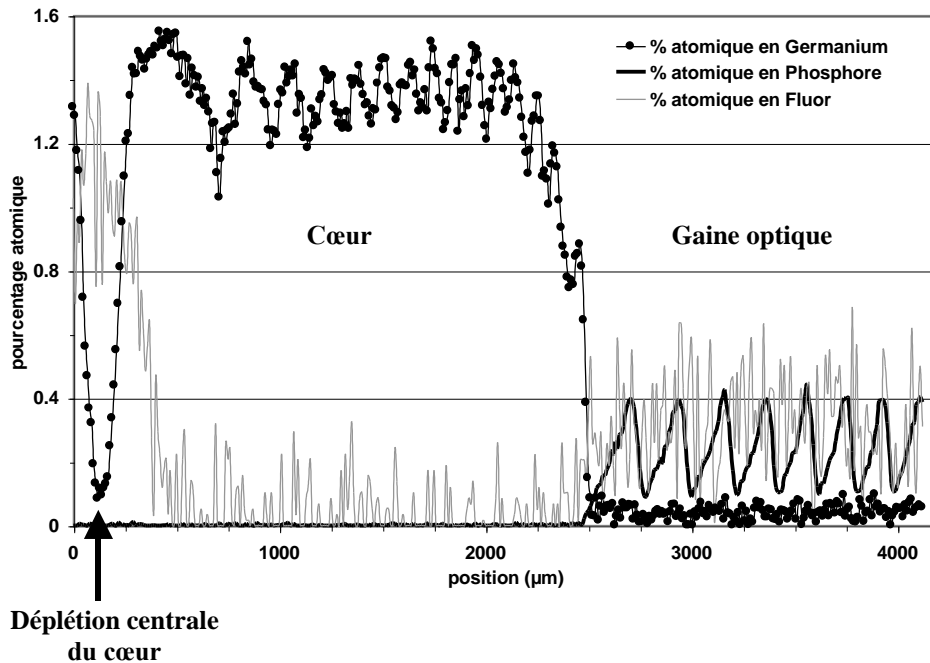
Ces résultats semblent bien indiquer que les dommages de type II sont dus à des effets d'accumulation thermique.

On voit que le seuil d'apparition du dommage de type II se rapproche de celui du type I lorsque le taux de répétition augmente. Après analyse des deux types de dommages, il apparaît clairement que si l'on souhaite utiliser ces interactions entre les impulsions femtosecondes et la silice pour fabriquer des guides d'onde, il convient d'éviter la formation du type II qui s'accompagne de micro-fractures et qui est légèrement diffusant. Utiliser un fort taux de répétition, 100 kHz par exemple, permettrait de travailler rapidement. Cependant, la gamme d'énergie utilisable entre les deux seuils est restreinte. Il sera nécessaire de trouver un compromis entre vitesse de travail et souplesse au niveau des paramètres d'inscription.

Le type II ne doit cependant pas être exclu du fait sa diffusion ou des micro-fractures qui l'accompagnent. Sa forte biréfringence et la finesse de sa "queue" peuvent également représenter un intérêt pour la fabrication d'éléments optiques.

#### 4.5.2. Etudes des seuils d'endommagement dans une préforme de fibre optique

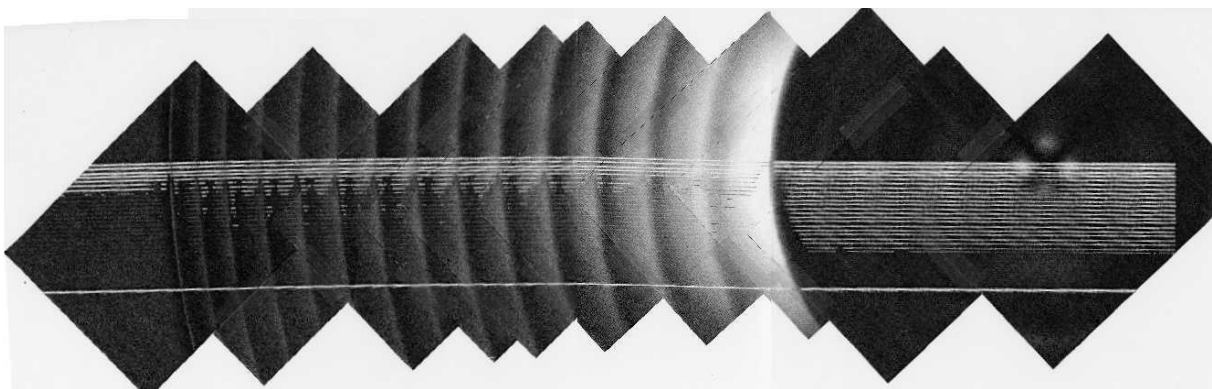
Nous avons vu au chapitre 3 que les dommages induits par les impulsions laser focalisées dans la silice sont couplés au recul du foyer. Ce recul dû à l'effet Kerr optique fait notamment intervenir la puissance critique liée à l'indice non-linéaire  $n_2$ . Afin de connaître expérimentalement l'influence de cet indice sur l'apparition des dommages, j'ai étudié ces seuils de dommage dans une préforme de fibre optique. Cette préforme se présente sous la forme d'une tranche de 2 mm d'épaisseur. Elle est constituée en périphérie d'une zone de silice non dopée appelée tube et au centre, le cœur est de la silice dopée au germanium. Entre ces deux zones se trouve la gaine optique qui est constituée d'une dizaine d'anneaux dont les dopants varient en qualité et quantité en fonction de l'indice souhaité par le fabricant. La figure 4.28 montre une analyse de la composition de cette préforme de fibre optique en fonction de son rayon.



*Figure 4.28 : Composition de la préforme de fibre optique. L'ensemble de la gaine optique n'a pas été analysé. Il y a autour de cette gaine de silice dopée un tube de silice pure.*

Pour connaître les seuils de dommage dans la silice non-dopée et la silice dopée au germanium, j'ai inscrit des lignes parallèles dans la préforme en faisant varier l'énergie d'une ligne à l'autre. Ces lignes partent de l'extérieur de la préforme jusqu'au cœur. Elles partent donc de la silice non dopée, traversent les 14 anneaux de la gaine dopée au phosphore et au fluor pour arriver au cœur dopé au germanium. L'image de la figure 4.29 donne une vision globale de la préforme et des lignes inscrites. Pour obtenir cette image à partir d'un microscope optique, la préforme a été placée entre deux polariseurs croisés. Afin de voir les lignes grâce à leur biréfringence, la préforme a été positionnée de manière à ce que l'axe de la polarisation du laser d'inscription forme un angle de  $45^\circ$  par rapport aux axes des polariseurs.

Remarquons que l'on distingue très bien les anneaux de la gaine et la déplétion du cœur. La fabrication de la préforme impose en effet des contraintes à la silice. Elles sont dues aux différences de composition qui induisent des désaccords de dilatation du coefficient thermique. Ce sont ces contraintes qui en dépolarisant une partie de la lumière permettent d'observer les différentes parties de la préforme.



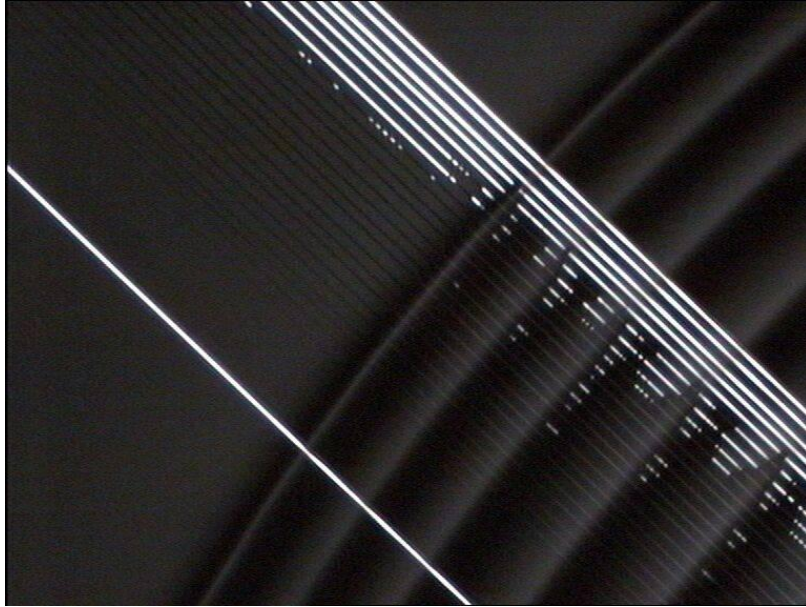
*Figure 4.29 : Microscopie optique en lumière polarisée. La préforme de fibre optique où les lignes de dommages ont été inscrites par focalisation des impulsions femtosecondes est placée entre deux polariseurs croisés. La polarisation du laser d'inscription est placée à  $45^\circ$  des axes des polariseurs croisés.*

La figure 4.31 montre un agrandissement des lignes inscrites dans la silice non dopée et dans les premiers anneaux de la gaine. La figure 4.32 montre les mêmes lignes inscrites au niveau du cœur. L'énergie des impulsions utilisée varie de 1.26  $\mu\text{J}$  à 55 nJ. Dans la silice non dopée on distingue 7 lignes de type II, 2 lignes en alternance type I / type II et 16 lignes de type I. Au cœur de la préforme, il y a 22 lignes de type II et 4 lignes de type I. On en tire les seuils de dommages de ces deux matériaux. Ils sont donnés dans le tableau de la figure 4.30.

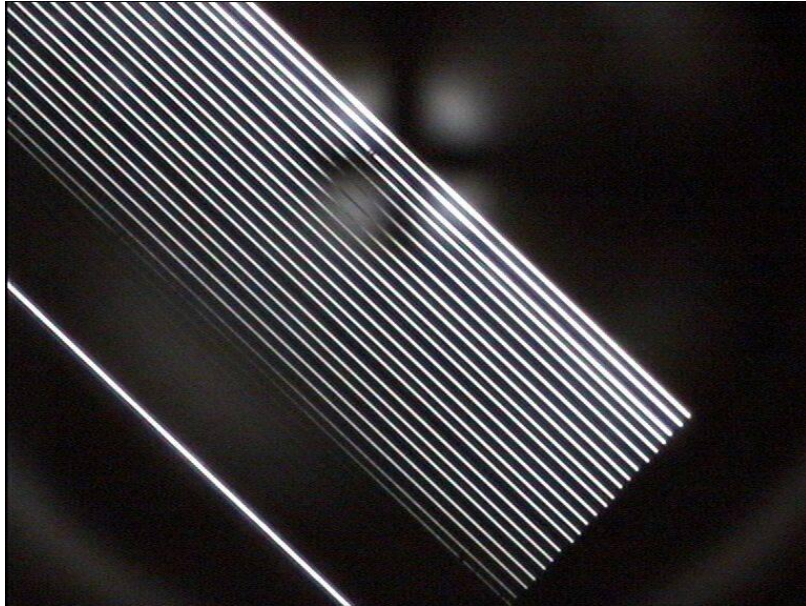
	Seuil de dommage Type I	Seuil de dommage Type II
Silice non dopée	0,095 +/- 0,005 $\mu\text{J}$	0,40 +/- 0,05 $\mu\text{J}$
Cœur (silice dopée Ge)	0,09 +/- 0,005 $\mu\text{J}$	0,14 +/- 0,05 $\mu\text{J}$

*Figure 4.30 : Seuils de dommages au cœur de la préforme dopé au germanium et en périphérie constituée de silice non dopée.*

Le premier seuil de dommage de la silice dopée est proche de la silice non dopée. Par contre, le seuil pour obtenir des dommages de type II est presque trois fois plus bas pour la silice dopée que pour la silice.



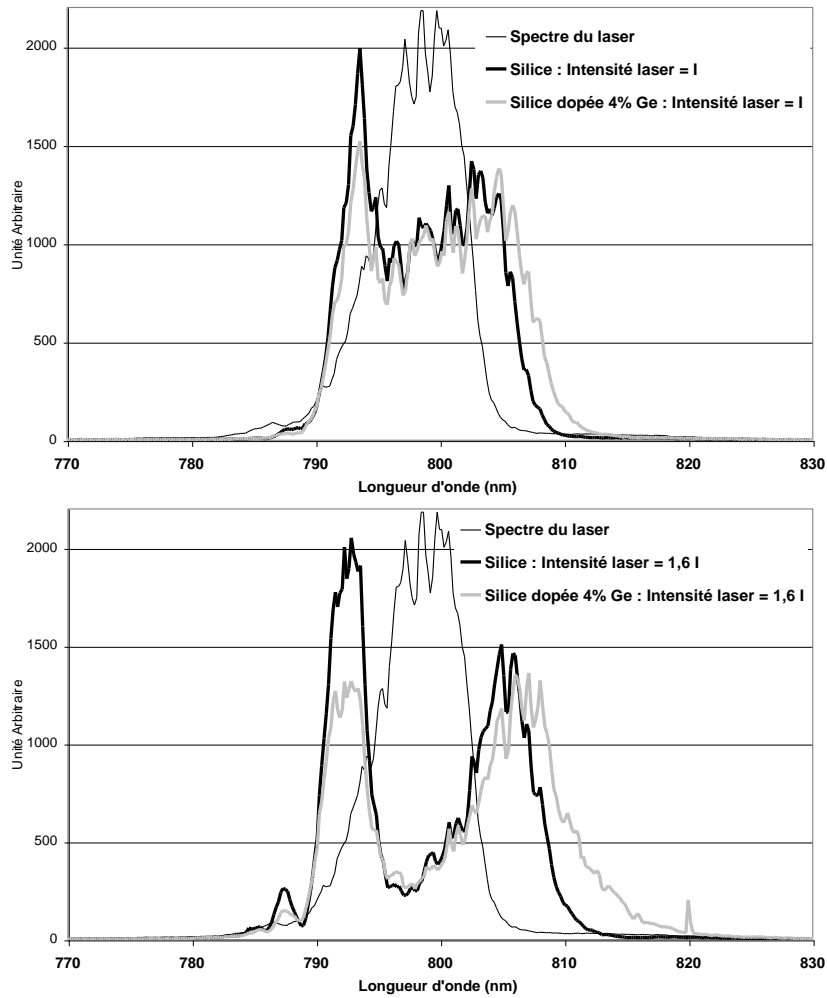
*Figure 4.31* : Microscopie optique en lumière polarisée. Même principe d'observation qu'à la figure 4.25. Agrandissement de la zone non dopée de la préforme et des premiers anneaux. Observation de 7 lignes de type II, 2 lignes au seuil type I / type II et 16 lignes de type I.



*Figure 4.32* : Microscopie optique en lumière polarisée. Même principe d'observation qu'à la figure 4.25. Agrandissement du cœur de la préforme dopé au Germanium. Observation de 22 lignes de type II et 4 lignes de type I.

Pour savoir si cette différence de comportement est due à une réduction de la puissance critique c'est-à-dire à une augmentation de l'indice non-linéaire  $n_2$ , nous avons réalisé des spectres d'automodulation de phase au niveau du cœur et de la silice non dopée. Nous avons enregistré deux spectres qui semblent pratiquement identiques avec une intensité laser  $I$  comme le montre la figure 4.33. Cependant, pour avoir la certitude que les indices non-linéaires responsables de l'automodulation de phase sont proches, nous avons enregistré deux nouveaux spectres en augmentant l'intensité jusqu'à  $1.6 I$ . Les spectres sont à nouveau très proches mais bien différents de ceux obtenus avec une intensité  $I$ . Par conséquent, cette expérience nous permet de dire que les indices non-linéaire  $n_2$  du cœur de la préforme constitué de silice dopée au germanium et de la gaine en silice sont très voisins.

Une méthode complète à partir de l'enregistrement de tels spectres d'automodulation de phase et d'un algorithme a été développée au laboratoire pour obtenir l'indice non-linéaire d'un milieu transparent [52]. Nous nous sommes arrêtés à l'enregistrement des spectres d'automodulation de phase puisque nous avons obtenu la comparaison souhaitée sur  $n_2$ .



*Figure 4.33 : Spectres d'automodulation de phase au cœur de la préforme en silice dopée au germanium et dans la gaine en silice. Spectres du haut obtenus avec une intensité laser  $I$ . Spectres du bas obtenus avec une intensité laser  $1.6I$ .*



### 4.5.3. Etude de l'émission du troisième harmonique

La propagation d'impulsions femtosecondes est accompagnée par les phénomènes non-linéaires décrits au chapitre 1. L'effet Kerr sous la forme de l'introduction d'une polarisation non-linéaire fait intervenir un terme proportionnel au cube du champ électrique. Nous avons vu au chapitre 1 que la polarisation s'écrit sous la forme :

$$\mathcal{P}(t) = \varepsilon_0 (\chi^{(1)} \mathcal{E}(t) + \chi^{(2)} \mathcal{E}^2(t) + \chi^{(3)} \mathcal{E}^3(t) + \dots) \quad (1.14)$$

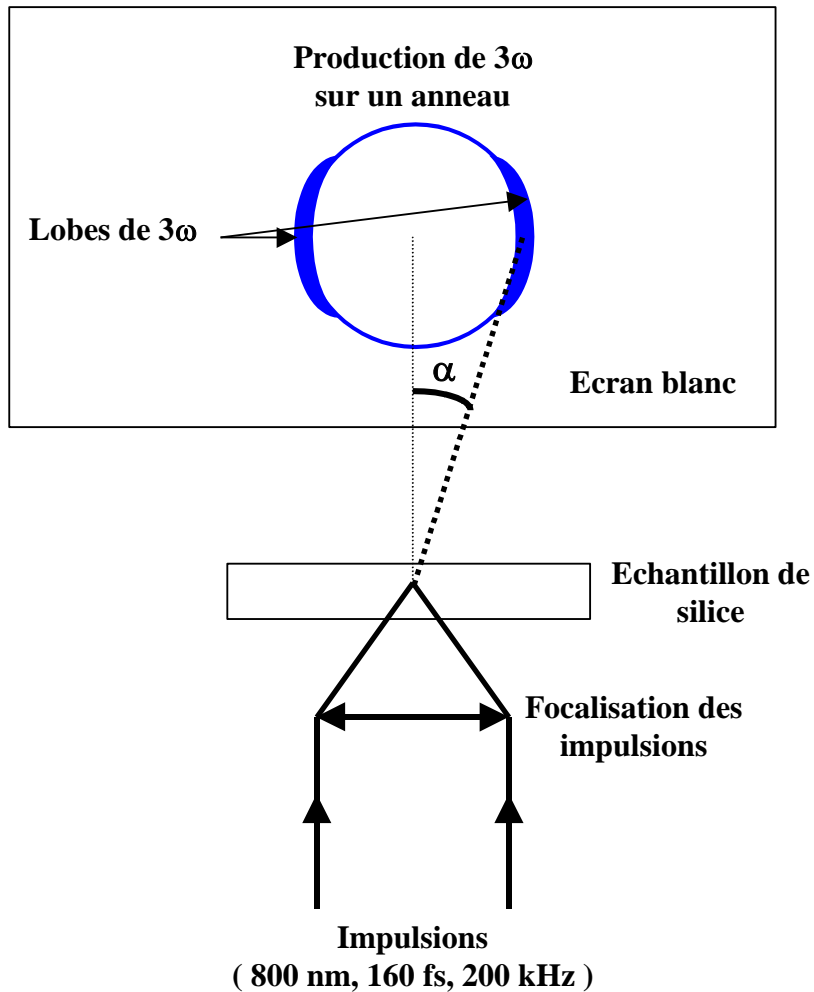
Précisons que dans cette expression  $\mathcal{E}(t)$  est le champ réel soit :

$$\mathcal{E}(r,t) = \frac{1}{2} (\mathbf{E}(r,t) e^{-i\omega_0 t} + \bar{\mathbf{E}}(r,t) e^{+i\omega_0 t})$$

Outre le terme de fréquence  $\omega_0$ , le développement complet de la polarisation non-linéaire  $\mathcal{P}_{NL}$  dans un milieu amorphe introduit des termes à la fréquence  $(3\omega_0)$ . On a :

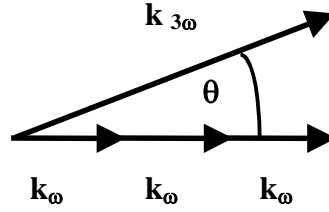
$$\mathcal{P}_{NL}(t) \propto \frac{1}{8} \varepsilon_0 \chi^{(3)} (\mathbf{E}^3 e^{-i3\omega_0 t} + \bar{\mathbf{E}}^3 e^{+i3\omega_0 t})$$

Lors de la focalisation d'impulsions femtosecondes dans la silice nous avons enregistré un spectre élargi et notamment un pic autour de 267 nm correspondant au troisième harmonique de la longueur d'onde centrale d'émission du laser. La longueur d'onde à 267 nm est invisible à l'œil nu. Elle peut être cependant être facilement observée sur un écran blanc grâce à sa fluorescence bleue. J'ai mesuré l'angle d'émission  $\alpha$  du troisième harmonique pour deux objectifs de focalisation (x10 ; NA 0.25) et (x20 ; NA 0.50). Dans les deux cas, il est l'ordre de 21 à 22°. Le schéma de principe de la visualisation du troisième harmonique est donné à la figure 4.34.



*Figure 4.34* : Principe d'observation de l'émission du troisième harmonique (267 nm) par focalisation d'impulsions femtosecondes dans un échantillon massif de silice ou de quartz. Impulsions : 800 nm, 160 fs, 1 à 2  $\mu$ J, 200 kHz. Emission du troisième harmonique sur un anneau selon un angle  $\alpha$  de 21 à 22 °.

Pour que le troisième harmonique soit produit avec un maximum de rendement, il faut que la vitesse de phase de la longueur d'onde fondamentale (800 nm) soit égale à celle de la longueur d'onde du troisième harmonique (267 nm). Cela peut être représenté par le schéma de la figure 4.35.



*Figure 4.35 : Emission du troisième harmonique selon un angle  $\theta$  par rapport au fondamental nécessaire pour l'accord de phase entre les deux ondes.*

Cela peut se traduire par la relation :

$$\frac{\bar{c}_\omega}{n_\omega} = \frac{\bar{c}_{3\omega}}{n_{3\omega}}$$

ou encore :

$$\frac{c_\omega}{n_\omega} = \frac{c_{3\omega}}{n_{3\omega} \cos \theta}$$

On a alors :

$$\cos \theta = \frac{n_\omega}{n_{3\omega}}$$

Ainsi dans la silice l'angle de production du troisième harmonique est égale à :

$$\cos \theta = \frac{n_\omega}{n_{3\omega}} = \frac{1.453}{1.499}$$

soit  $\theta = 14,23^\circ$

Or les mesures expérimentales de l'angle d'émission ont été réalisées dans l'air et non dans la silice. Par conséquent, il faut tenir compte de la réfraction due au passage verre/air. Elle peut s'exprimer de façon simple par la relation :

$$n_{3\omega} \sin \theta = n_{air} \sin \alpha$$

soit  $\sin \alpha = 1.499 \sin(14,23)$

et  $\alpha = 21.62^\circ$

Cette valeur est donc en très bon accord avec nos mesures expérimentales.

Cette observation a également été faite par Kasansky et al. [53] qui ont mesuré également un angle d'émission en sortie de silice de  $21.6^\circ$ .

L'originalité de nos observations repose sur la présence d'un renforcement de l'émission du troisième harmonique sur le cercle. Deux lobes apparaissent dans l'axe de polarisation du laser d'inscription à 800 nm comme le montre la figure 4.34. Lorsque nous tournons la polarisation linéaire du laser grâce à une lame demi-onde, la position des deux lobes tourne du même angle. Kasansky et al [53 , 54] ont observé ce même phénomène en focalisant leur faisceau à l'intérieur d'un échantillon de silice dopée au germanium. Ils interprètent ce phénomène comme étant la première mise en évidence de la diffusion de façon anisotrope des photoélectrons dans un milieu isotrope. Le champ électrique intense impose aux électrons un déplacement microscopique dans la direction de la polarisation du laser. Ces déplacements peuvent conduire à des fluctuations anisotropes de la constante diélectrique qui induisent des inhomogénéités de l'indice du milieu. Une partie des photons UV peut être diffractée par les photoélectrons eux-mêmes ou par les inhomogénéités qu'ils ont créées. Ce déplacement préférentiel des électrons le long de la polarisation du laser pourrait être en relation avec la biréfringence observée au niveau des dommages induits dans la silice.

Cependant, nous avons observé que le renforcement de l'émission du troisième harmonique sur le cercle au niveau des deux lobes peut apparaître avec un petit délai inférieur à 2 ou 3 secondes par rapport au début de l'exposition. Ce comportement est en accord avec nos hypothèses faites pour expliquer l'absorption de longue durée observée en pompe-test ainsi que le seuil de dommage de type II qui est fonction du taux de répétition. Les dommages de type II sont liés à des effets thermiques.

Cet exemple sur la production du troisième harmonique illustre toute la complexité des interactions entre les impulsions femtosecondes et les milieux solides transparents. Malgré mes caractérisations approfondies des dommages et les études sur la propagation, il reste des zones d'ombres qui nécessitent des études complémentaires.

## Références bibliographiques

- [1] E. Yablonovitch and N. Bloembergen, Phys. Rev. Lett. 29, 907 (1972).
- [2] N. Bloembergen, IEEE J. Quantum Electron. QE-10, 375 (1974).
- [3] W.L. Smith, Opt Eng. 17, 489 (1978).
- [4] S.C. Jones, P. Braunlich, R.T. Casper, X.-A. Shen and P. Kelly, Opt Eng 28, 1039 (1989).
- [5] N. Bloembergen, J. of Nonlinear Optical Physics and Materials 6, 377 (1997).
- [6] M.D. Perry and G. Mourou, Science 264, 917 (1994).
- [7] D.W. Fradin, N. Bloembergen and J.P. Letellier, Appl. Phys. Lett. 22, 636 (1973).
- [8] J.H. Campbell et al. in Lasers Induced Damage in Optical Materials, SPIE, 1441, 444 (1990).
- [9] R.M. Wood, Laser Damage in Optical Materials (Hilger, Boston, 1986).
- [10] D. von der Linde and H. Schüler, JOSA B. 13, 216 (1996).
- [11] D. Du, X. Liu, G. Korn, J. Squier and G. Mourou, Appl. Phys. Lett. 64, 3071 (1994).
- [12] B.C. Stuart, M.D. Feit, A.M. Rubenchik, B.W. Shore and M.D. Perry, Phys. Rev. Lett. 74, 2248 (1995).
- [13] B.C. Stuart, M.D. Feit, A.M. Rubenchik, B.W. Shore and M.D. Perry, J. Opt. Soc. Am. B 13, p459 (1996).
- [14] B.C. Stuart, M.D. Feit, S. Herman, A.M. Rubenchik, B.W. Shore and M.D. Perry, Phys. Rev. B 53, p1749 (1996).
- [15] H. Varel, D. Ashkenasi, A. Rosenfeld, R. Herrmann, F. Noack and E.E.B. Campbell, Appl. Phys. A 62, 293 (1996).

- [16] M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, Z. Cheng, Ch. Spielmann, G. Mourou, W. Kautek and F. Krausz, *Phys. Rev. Lett.* 80, 4076 (1998).
- [17] M. Li, S. Menon, J.P. Nibarger and G.N. Gibson, *Phys. Rev. Lett.* 82, 2394 (1999).
- [18] A.-C. Tien, S. Backus, H. Kapteyn, M. Murnane and G. Mourou, *Phys. Rev. Lett.* 82, 3883 (1999).
- [19] K.K. Thornber, *J. Appl. Phys.* 52, 279 (1981).
- [20] L.V. Keldysh, *Sov. Phys. JETP* 20, 1307 (1965).
- [21] D. Du, X. Liu and G. Mourou, *Appl. Phys. B* 63, 617 (1996).
- [22] M.J. Soileau, W.E. Willimas, N. Mansour and E.W. Van Stryland, *Opt. Eng.* 28, 1133 (1989).
- [23] C.B. Schaffer, A. Brodeur, J.F. Garcia and E. Mazur, *Opt. Lett.* 26, 93 (2001).
- [24] C.B. Schaffer, Intercation of femtosecond laser pulses with transparent materials, Thesis, Harvard University, Cambridge, Massachusetts, USA (may 2001).
- [25] K.S. Frederickson, W.E. White, R.G. Wheeland and D.R. Slaughter, *Archives of Dermatology* 129, 989 (1993).
- [26] F.H. Loesel, J.P. Fischer, M.H. Goetz, C. Horvath, T. Juhasz, F. Noack, N. Suhm and J.F. Bille, *Appl. Phys. B* 66, 121 (1998).
- [27] M.D. Feit, A.M. Rubenchik, B.-M. Kim, L.B. da Silva and M.D. Perry, *Appl. Surf. Sci.* 127-129, 869 (1998).
- [28] C. Momma, S. Nolte, B.N. Chichkov, F.v. Alvensleben and A. Tünnermann, *Appl. Surf. Sci.* 109-110, 15 (1997).
- [29] X. Zhu, D.M. Villeneuve, A. Yu. Naumov, S. Nikumb and P.B. Corkum, *Appl. Surf. Sci.* 152, 138 (1999).
- [30] M. Lenzner, J. Kruger, W. Kautek, F. Krausz, *Appl. Phys. A* 68, 369 (1999).

- [31] M. Lenzner, F. Krausz, J. Krüger and W. Kautek, *Appl. Surf. Sci.* 154-155, 11 (2000).
- [32] L. Shah, J. Tawney, M. Richardson and K. Richardson, *Appl. Surf. Sci.* 183, 151 (2001).
- [33] K.M. Davis, K. Miura, N. Sugimoto and K. Hirao, *Opt. Lett.* 21, 1729 (1996).
- [34] E.N. Glezer, M. Milosavljevic, L. Huang, R.J. Finlay, T.-H. Her, J.P. Callan and E. Mazur, *Opt Lett.* 21, 2023 (1996).
- [35] E.N. Glezer, E. Mazur, *Appl. Phys. Lett.* 71, 882 (1997).
- [36] K. Miura, Jianrong Qiu, H. Inouye, T. Mitsuyu and K. Hirao, *Appl. Phys. Lett.* 71, 3329 (1997).
- [37] K. Miura, H. Inouye, Jianrong Qiu, T. Mitsuyu and K. Hirao, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B141*, 726 (1998).
- [38] K. Hirao and K. Miura, *Journal of Non-Crystalline Solids* 239, p91 (1998).
- [39] Y. Kondo, T. Suzuki, H. Inouye, K. Miura, T. Mitsuyu and K. Hirao, *Jpn. J. Appl. Phys.* 37, L94 (1998).
- [40] J. Qiu, K. Miura and K. Hirao, *Jpn. J. Appl. Phys.* 37, 2263 (1998).
- [41] M. Watanabe, H. Sun, S. Juodkazis, T. Takahashi, S. Matsuo, Y. Suzuki, J. Nishii, H. Misawa, *Jpn. J. Appl. Phys.* 37, L1527 (1998).
- [42] T. Cardinal, O.M. Efimov, L.B. Glebov, K.C. Richardson, E. Van Stryland, *Conference on Lasers and Electro-Optics, CThL2* p373 (1998).
- [43] L. Sudrie, M. Franco, B. Prade and A. Mysyrowicz, *Opt. Comm.* 171, 279 (1999).
- [44] D. Homoelle, S. Wielandy, A.L. Gaeta, N.F. Borrelli and C. Smith, *Opt. Lett.* 24, 1311 (1999).
- [45] A.L. Gaeta, *Phys. Rev. Lett.* 84, 3582 (2000).

- [46] O.M. Efimov, K. Gabel, S.V. Garnov, L.B. Glebov, S. Grantham, M. Richardson and M.J. Soileau, *J. Opt. Soc. Am. B* 15, 193 (1998).
- [47] L. Sudrie, M. Franco, B. Prade and A. Mysyrowicz, *Opt. Comm.* 191, 333 (2001).
- [48] D. Ashkenasi, H. Varel, A. Rosenfeld, S. Henz, J. Herrmann and E.E.B. Cambell, *Appl. Phys. Lett.* 72, 1442 (1998).
- [49] K. Yamada, W. Watanabe, T. Toma, K. Itoh and J. Nishii, *Opt. Lett.* 26, 19 (2001).
- [50] Documentation Heraeus Silice transparente et opaque.
- [51] B. Poumellec, Ph. Guénot, R. Nadjo, B. Keita and M. Nicolardot, *J. of Lithwave Technology* 17, 1357 (1999).
- [52] E.T.J. Nibbering, M.A. Franco, B.S. Prade, G. Grillon, C. Le Blanc and A. Mysyrowicz, *Opt. Comm.* 119, 479 (1995).
- [53] P.G. Kazansky, H. Inouye, T. Mitsuyu, K. Miura, J. Qiu, K. Hirao and F. Starrost, *QELS'00, QFA3* p242.
- [54] P.G. Kazansky, H. Inouye, T. Mitsuyu, K. Miura, J. Qiu, K. Hirao and F. Starrost, *Phys. Rev. Lett.* 82, 2199 (1999).



## *Chapitre 5*

### ***UTILISATION DES INTERACTIONS LASER/SILICE***

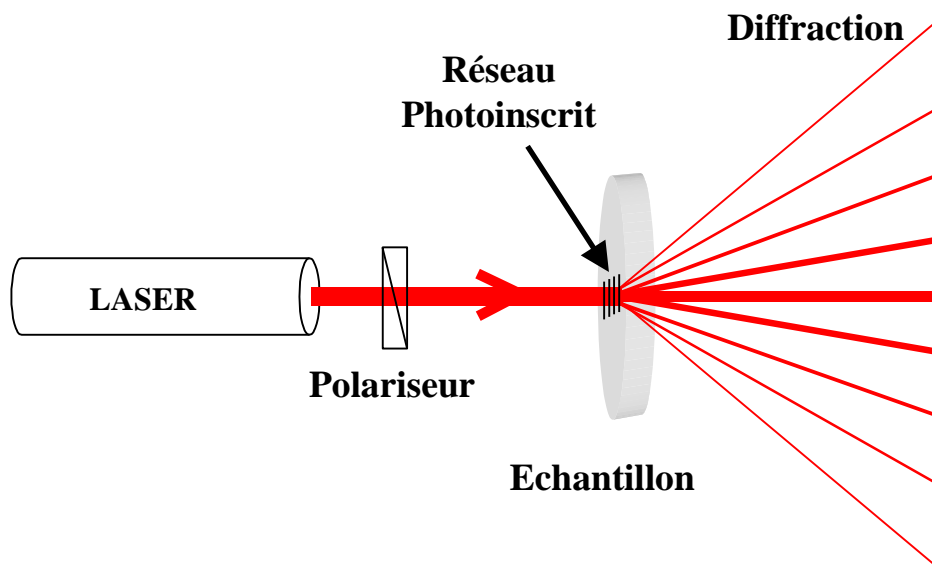
#### ***FABRICATION D'ELEMENTS OPTIQUES***

##### **5.1. Réalisation de réseaux de diffraction en transmission**

Nous avons vu au chapitre 4 que les "couches quasi-homogènes" constituées de lignes parallèles diffractent la lumière. J'ai également inscrit des réseaux de lignes parallèles séparées de quelques dizaines de microns dans le plan (xy) perpendiculaire à l'axe laser z. Si ce type de réseau est éclairé par un laser de faible puissance, on observe un grand nombre d'ordres de diffraction en transmission. Je nommerai par la suite "laser d'écriture" le laser femtoseconde qui induit les dommages et "laser de lecture" le faisceau de faible intensité diffracté par l'ensemble des traits du réseau fabriqué. Le schéma de la figure 5.1 représente la diffraction d'un réseau inscrit dans un échantillon. Le réseau de diffraction est éclairé par un faisceau collimaté de faible intensité. Un polariseur ou une lame demi-onde est placé sur le faisceau afin de pouvoir tourner la polarisation du laser de lecture. La diffraction a été observée et mesurée avec 5 longueurs d'ondes différentes:

- laser continu HeNe : 633 nm et 543 nm.
- diode laser continu : 1.55  $\mu\text{m}$ .
- laser Ti:Saphir pulsé : 800 nm et 400 nm (deuxième harmonique).
- laser à colorant pulsé : 620 nm.

Cependant, la plupart des études de diffraction ont été réalisées à 633 nm. Certaines ont déjà fait l'objet d'une publication [1].



*Figure 5.1 : Diffraction en transmission d'un faisceau de faible intensité par un réseau inscrit en volume dans un échantillon transparent par focalisation d'impulsions femtosecondes.*

Les intensités diffractées dans tous les ordres sont mesurées à l'aide d'un wattmètre ou d'une diode. Afin de connaître l'efficacité du réseau en transmission, il est nécessaire que la tache laser soit plus petite que le réseau. Si la tache laser est trop large, une partie de la lumière ne peut être diffractée et l'ordre zéro est artificiellement augmenté.

### **5.1.1. Réseaux de diffraction biréfringents**

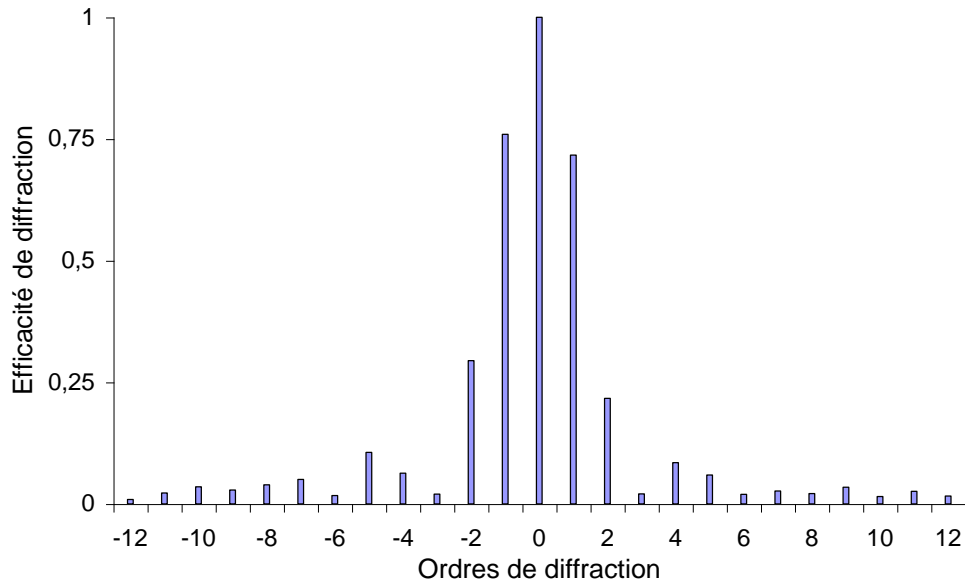
Je me suis principalement intéressé aux réseaux constitués de lignes de dommages de type II car ils sont très diffractants et biréfringents comme cela va être montré. Dans le cas présenté ci-après, les traits ont été inscrits le long de l'axe x. La polarisation du faisceau laser d'écriture est également parallèle à x. Les conditions d'inscription sont

données dans les légendes des figures 5.2 et 5.3. La taille classique d'un réseau est de 2 x 1 mm pour pouvoir l'éclairer sans trop de problème.

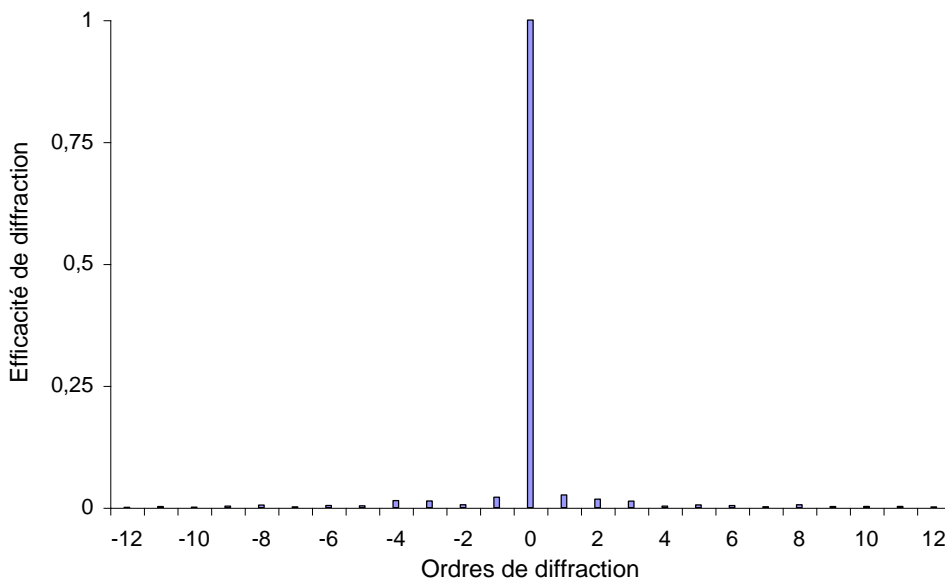
Si la polarisation du faisceau laser de lecture est parallèle à celle du laser d'écriture, on observe la diffraction maximale de la figure 5.2. Si ces deux polarisations sont perpendiculaires, la diffraction est beaucoup plus faible comme l'indique la figure 5.3.

Nous avons observé expérimentalement plus de 2 x 20 ordres diffractés visibles à l'œil nu mais difficiles à mesurer pour les ordres les plus élevés.

Si la polarisation d'inscription est perpendiculaire aux traits, l'efficacité de diffraction est également maximale lorsque les deux polarisations de lecture et d'écriture sont parallèles. Elle est minimale lorsque les deux polarisations sont perpendiculaires. L'efficacité de diffraction est donc indépendante de l'orientation des traits. A l'image des traits qui les constituent, les réseaux fabriqués à partir de lignes de dommage de type II sont donc fortement biréfringents. Le laser d'écriture induit donc un fort déphasage selon l'axe parallèle à sa polarisation d'écriture alors qu'il est beaucoup plus faible dans la direction perpendiculaire. Cette biréfringence des réseaux constitués de dommages de type II a été confirmée très récemment [2].



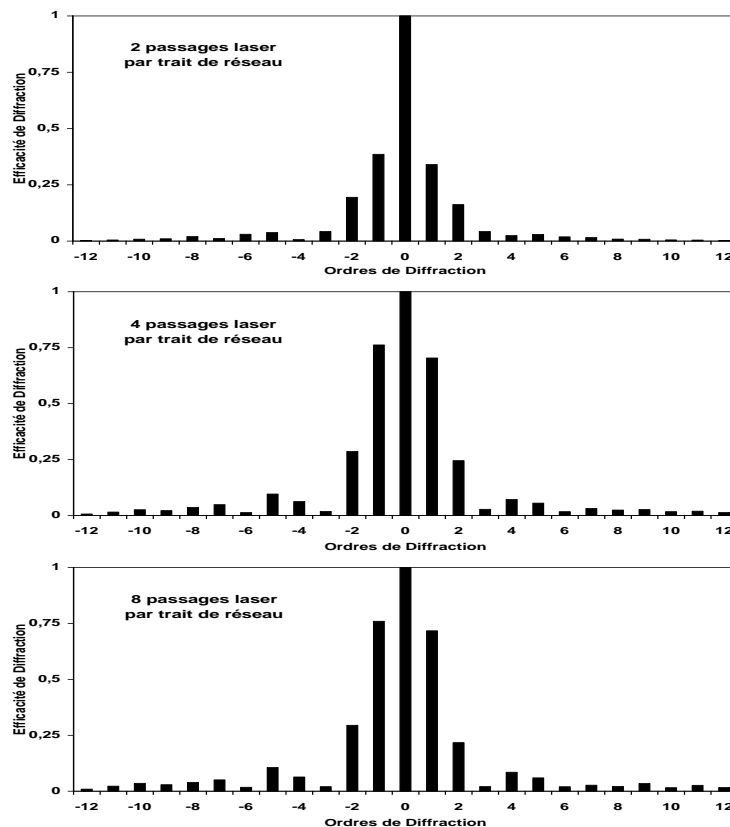
*Figure 5.2 : Diffraction en transmission du faisceau d'un laser He:Ne continu à 633 nm de faible intensité par un réseau inscrit en volume dans un échantillon de silice amorphe. Focalisation (x10; NA 0.25). Impulsions (800 nm, 1  $\mu$ J, 160 fs, 200 kHz). Vitesse de déplacement 100  $\mu$ m/s, 8 passages laser par ligne. Pas du réseau 20  $\mu$ m. Polarisation du laser de lecture parallèle à la polarisation du laser d'écriture.*



*Figure 5.3 : Diffraction en transmission du faisceau d'un laser He:Ne continu à 633 nm de faible intensité par un réseau inscrit en volume dans un échantillon de silice amorphe. Focalisation (x10; NA 0.25). Impulsions (800 nm, 1  $\mu$ J, 160 fs, 200 kHz). Vitesse de déplacement 100  $\mu$ m/s, 8 passages laser par ligne. Pas du réseau 20  $\mu$ m. Polarisation du laser de lecture perpendiculaire à la polarisation du laser d'écriture.*

### 5.1.2. Observation d'un effet de saturation

La figure 5.4 montre l'efficacité de diffraction de trois réseaux fabriqués dans la même lame de silice en utilisant le même objectif ( $\times 10$ ; NA 0.25) pour focaliser des impulsions d'énergie  $1 \mu\text{J}$ . Les traits du réseau 1 ont été réalisés avec 2 passages laser, ceux du réseau 2 avec 4 passages et 8 passages pour le réseau 3. La diffraction augmente entre le premier et le deuxième réseau. Par contre, elle reste identique pour les réseaux 2 et 3. Les traits constituant les réseaux 2 et 3 sont par conséquent identiques en taille, en forme et induisent le même déphasage. On vient donc d'observer une saturation du phénomène de création de dommage de type II.



*Figure 5.4 : Diffraction mesurée en transmission du faisceau d'un laser He:Ne continu à 633 nm de faible intensité par 3 réseaux inscrit en volume dans un échantillon de silice amorphe. Focalisation ( $\times 10$ ; NA 0.25). Impulsions (800 nm,  $1 \mu\text{J}$ , 160 fs, 200 kHz). Vitesse de déplacement  $100 \mu\text{m/s}$ . Nombre de passages laser par ligne indiqué sur chaque spectre de diffraction. Pas des réseaux  $20 \mu\text{m}$ . Polarisation du laser de lecture parallèle à la polarisation du laser d'écriture.*

### **5.1.3. Caractérisation des traits des réseaux par transformée de Fourier inverse**

Etudier la diffraction d'un faisceau laser par un réseau inscrit donne des informations sur les caractéristiques des traits comme leur largeur, le déphasage moyen et leur forme.

J'ai développé un programme qui permet de retrouver les caractéristiques des traits du réseau par comparaison avec les mesures expérimentales des ordres diffractés. Pour cela, la transformée de Fourier de l'onde sur le réseau est calculée en faisant l'hypothèse que le déphasage introduit par chaque trait peut s'écrire sous la forme super-gaussienne suivante:

$$\varphi(y) = \varphi_0 \exp\left(-\left(\frac{y^2}{w^2}\right)^P\right)$$

Le pas des réseaux étant défini de façon certaine grâce aux moteurs pas-à-pas, il reste trois paramètres ajustables : le déphasage central de la gaussienne  $\varphi_0$ , la largeur des traits  $w$  et l'ordre  $P$  de la super-gaussienne. Le programme cherche la solution la plus proche des résultats expérimentaux en calculant et en comparant tous les spectres de diffraction dans les gammes données pour ces trois paramètres.

La figure 5.5 montre le résultat de la diffraction calculée pour simuler au mieux la diffraction du réseau 1 (échantillon de silice, pas de 20  $\mu\text{m}$ , 1  $\mu\text{J}$  par impulsion, objectif ( $\times 10$ ; NA 0.25), vitesse de déplacement 100  $\mu\text{m/s}$  et taux de répétition 200 kHz, 2 passages par ligne). Cette simulation donne :

- déphasage central :  $\varphi_0 = 2.05$  rad
- diamètre des traits :  $2w = 5.4$   $\mu\text{m}$
- ordre de la gaussienne :  $P = 7$

La figure 5.6 montre le résultat de la diffraction calculée pour simuler au mieux la diffraction du réseau 3 (échantillon de silice, pas de 20  $\mu\text{m}$ , 1  $\mu\text{J}$  par impulsion, objectif (x10; NA 0.25), vitesse de déplacement 100  $\mu\text{m/s}$  et taux de répétition 200 kHz, 8 passages par ligne). Cette simulation donne :

- déphasage central :  $\varphi_0 = 2.2 \text{ rad}$
- diamètre des traits :  $2w = 6.4 \mu\text{m}$
- ordre de la gaussienne :  $P > 30$

Comme les expériences de diffraction le laissaient entendre, le déphasage induit par chaque trait a augmenté légèrement entre les réseaux 1 et 3. Les traits du réseau 3 sont également plus larges que ceux du réseau 1. Le diamètre des traits est en très bon accord avec les observations réalisées au microscope optique qui indiquent une largeur comprise entre 6 et 7  $\mu\text{m}$  pour le réseau 3.

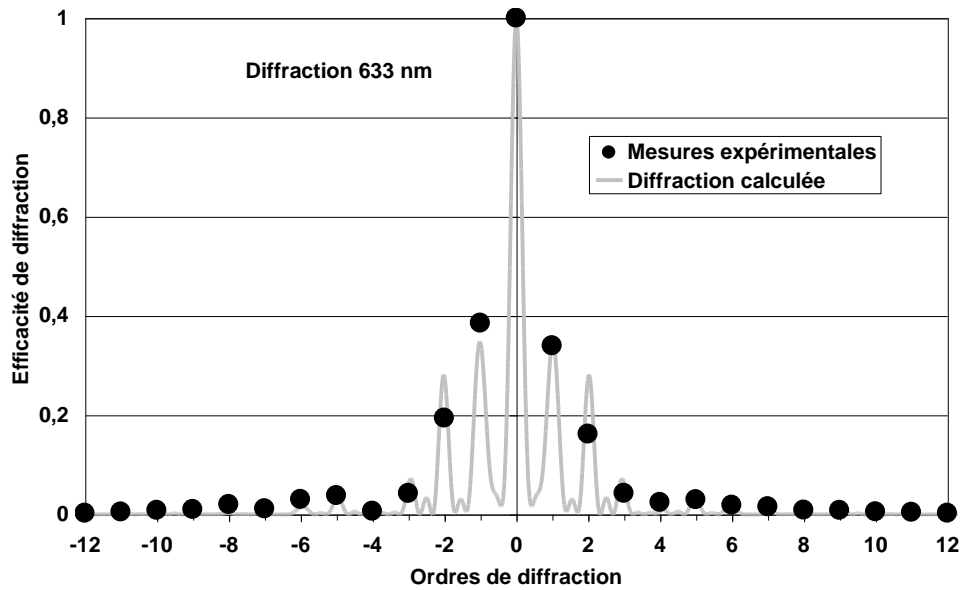
L'ordre de la gaussienne augmente également entre les deux réseaux. Cet ordre élevé de la gaussienne donne à la phase de chaque trait du réseau 3 une forme proche du carré. Cette forme est en accord avec l'effet de saturation observé précédemment.

Il est possible de relier le déphasage calculé à une variation d'indice par la relation suivante :

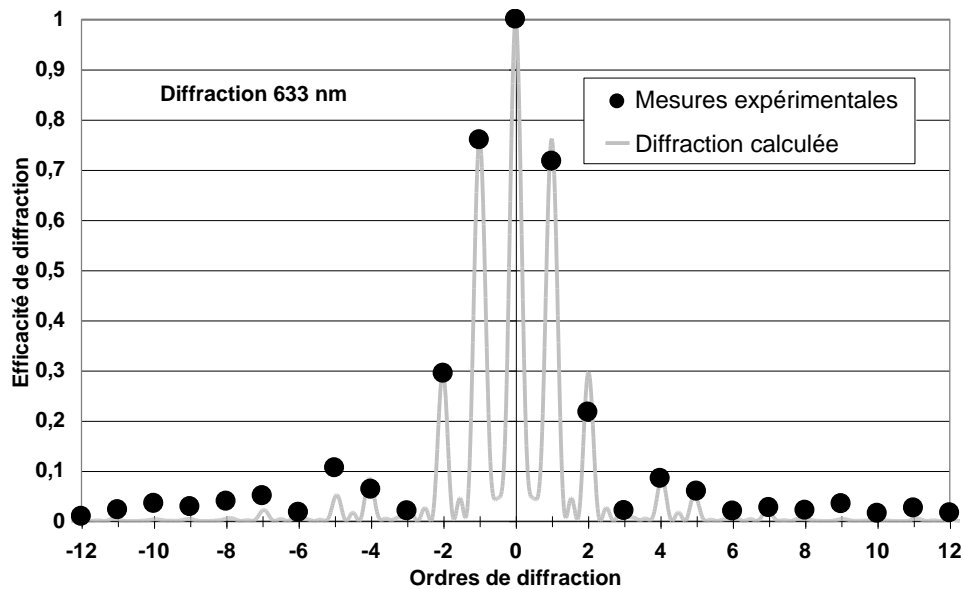
$$\varphi_0 = \frac{2\pi}{\lambda} e \Delta n$$

L'épaisseur  $e$  des traits selon  $z$  est de l'ordre de 10 à 20  $\mu\text{m}$  si l'on considère uniquement la partie fortement biréfringente des dommages. Le laser He:Ne utilisé pour ces diffractions délivrant une longueur d'onde de 633 nm la variation d'indice  $\Delta n$  peut être encadrée :

$$0.016 < \Delta n < 0.032 \quad \text{pour une longueur d'onde de 633 nm.}$$



*Figure 5.5 : Diffraction en transmission du faisceau d'un laser He:Ne continu à 633 nm de faible intensité par le réseau 1 inscrit en volume dans un échantillon de silice amorphe. Focalisation ( $\times 10$ ; NA 0.25). Impulsions (800 nm, 1  $\mu$ J, 160 fs, 200 kHz). Vitesse de déplacement 100  $\mu$ m/s. 2 passages laser par trait de réseau. Pas du réseau 20  $\mu$ m. Polarisation du laser de lecture parallèle à la polarisation du laser d'écriture.*



*Figure 5.6 : Diffraction en transmission du faisceau d'un laser He:Ne continu à 633 nm de faible intensité par le réseau 3 inscrit en volume dans un échantillon de silice amorphe. Focalisation ( $\times 10$ ; NA 0.25). Impulsions (800 nm, 1  $\mu$ J, 160 fs, 200 kHz). Vitesse de déplacement 100  $\mu$ m/s. 8 passages laser par trait de réseau. Pas du réseau 20  $\mu$ m. Polarisation du laser de lecture parallèle à la polarisation du laser d'écriture.*



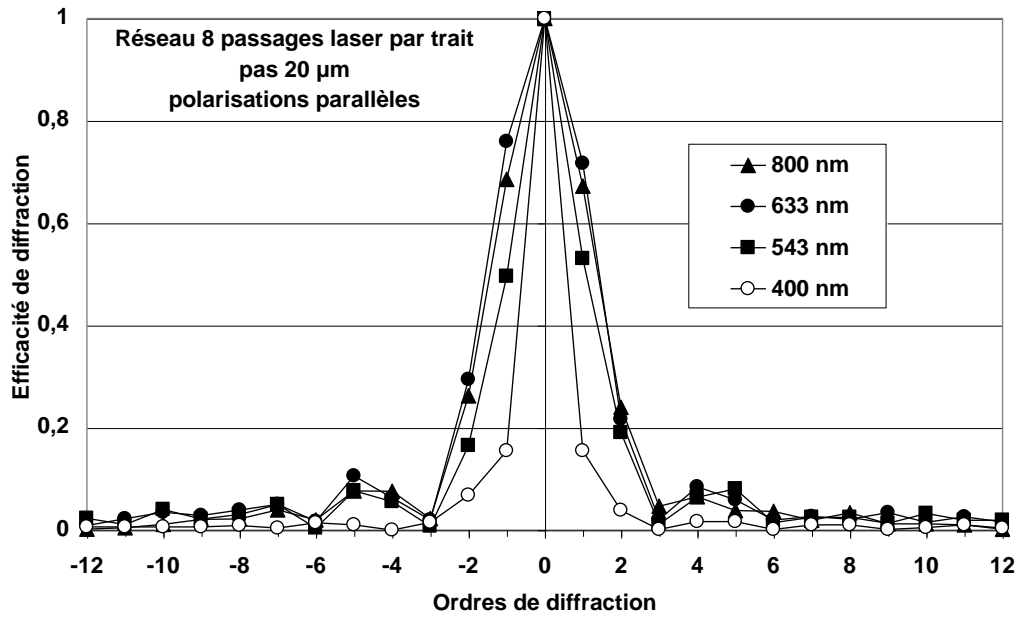
Naumov et al. ont également fabriqué des réseaux de diffraction en transmission avec des conditions d'inscriptions proches des nôtres et ils montrent une image des ordres de diffraction obtenus en éclairant un réseau de pas 20  $\mu\text{m}$  à l'aide d'un laser He-Ne [3]. Comme nous l'avons fait, Toma et al. utilisent la fabrication d'un réseau de diffraction de pas 4  $\mu\text{m}$  pour caractériser le déphasage induit par les impulsions femtosecondes focalisées [4].

Y. Kondo et al. ont été les premiers à publier sur la fabrication de réseaux de longue période en focalisant des impulsions à 800 nm de 120 fs à l'aide d'un objectif de microscope (x20; NA 0.46) directement dans le cœur d'une fibre optique [5].

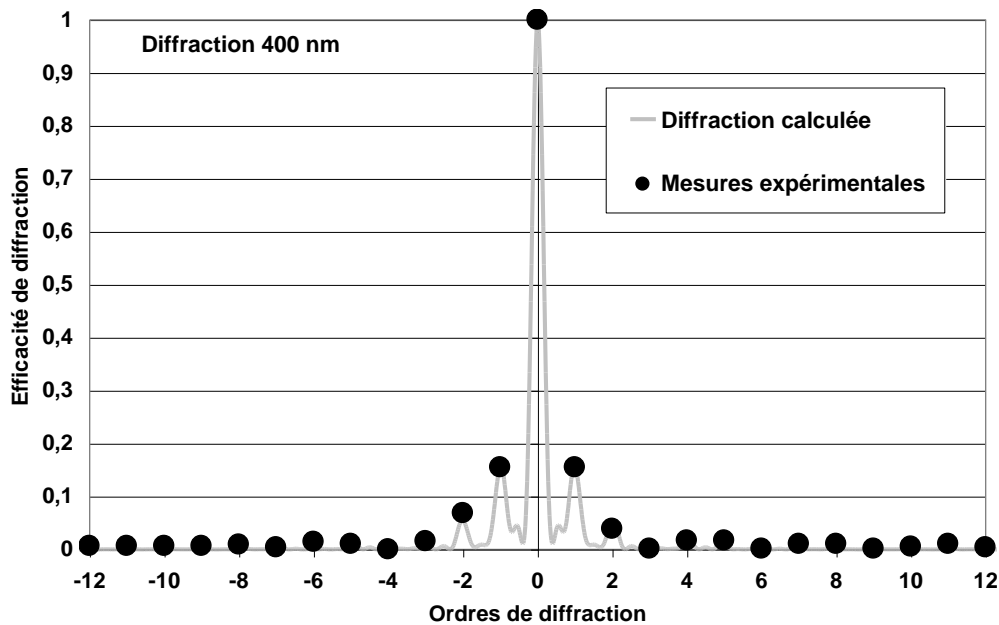
#### **5.1.4. Etude de la diffraction en fonction de la longueur d'onde**

J'ai réalisé des études de diffraction en fonction de la longueur d'onde. Elles ont été faites en utilisant le réseau 3 à 400 nm, 543 nm et 800 nm. Pour ces longueurs d'onde, la forte biréfringence du réseau a également été observée. Les résultats des mesures sont rassemblés à la figure 5.7.

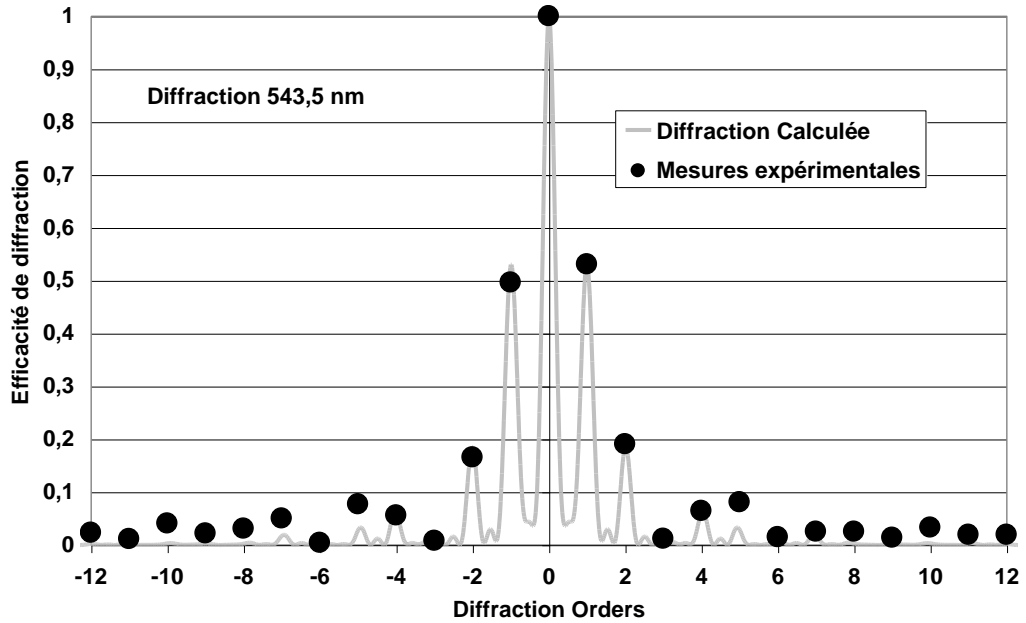
Les efficacités de diffraction à 633 et 800 nm sont proches. Par contre, la diffraction diminue avec la longueur d'onde pour 543 et 400 nm. Des simulations numériques ont été faites à partir de ces données expérimentales. Cependant, cette fois, la largeur des traits ne peut plus être un paramètre ajustable puisqu'il a été défini lors des simulations avec 633 nm. La diffraction calculée est donnée pour chacune des trois nouvelles longueurs d'onde par les figures 5.8 à 5.10.



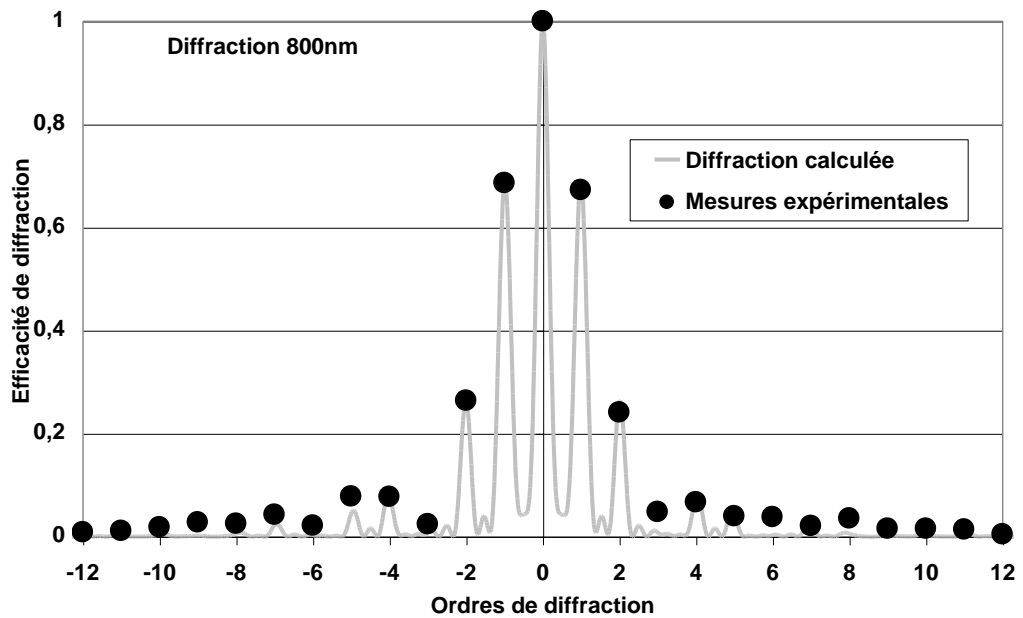
*Figure 5.7 : Diffraction mesurée en transmission de 4 faisceaux laser de faible intensité à 633, 800, 543 et 400 nm par le réseau 3 inscrit en volume dans un échantillon de silice amorphe. Focalisation ( $\times 10$ ; NA 0.25). Impulsions (800 nm, 1  $\mu\text{J}$ , 160 fs, 200 kHz). Vitesse de déplacement 100  $\mu\text{m/s}$ . 8 passages laser par trait de réseau. Pas du réseau 20  $\mu\text{m}$ . Polarisation des faisceaux laser de lecture parallèle à la polarisation du laser d'écriture.*



*Figure 5.8 : Diffraction en transmission du faisceau à 400 nm (200 kHz) de faible intensité par le réseau 3 inscrit en volume dans un échantillon de silice amorphe. Focalisation ( $\times 10$ ; NA 0.25). Impulsions (800 nm, 1  $\mu\text{J}$ , 160 fs, 200 kHz). Vitesse de déplacement 100  $\mu\text{m/s}$ . 8 passages laser par trait de réseau. Pas du réseau 20  $\mu\text{m}$ . Polarisation du laser de lecture parallèle à la polarisation du laser d'écriture.*

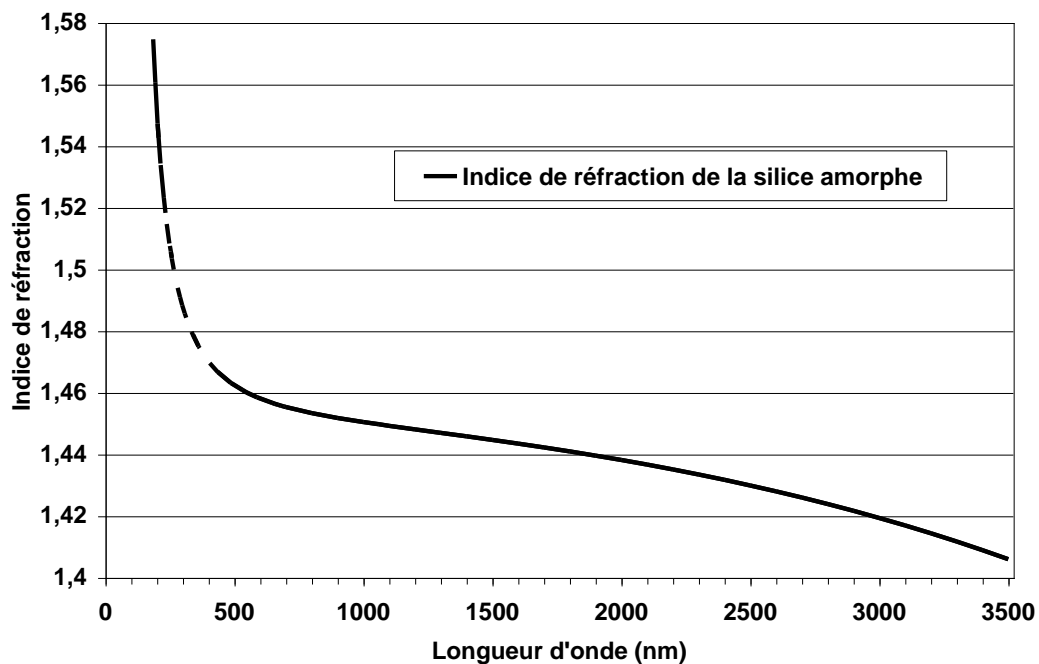


*Figure 5.9 : Diffraction en transmission du faisceau d'un laser He:Ne continu à 543 nm de faible intensité par le réseau 3 inscrit en volume dans un échantillon de silice amorphe. Focalisation (x10; NA 0.25). Impulsions (800 nm, 1  $\mu$ J, 160 fs, 200 kHz). Vitesse de déplacement 100  $\mu$ m/s. 8 passages laser par trait de réseau. Pas du réseau 20  $\mu$ m. Polarisation du laser de lecture parallèle à la polarisation du laser d'écriture.*



*Figure 5.10 : Diffraction en transmission du faisceau à 800 nm (200 kHz) de faible intensité par le réseau 3 inscrit en volume dans un échantillon de silice amorphe. Focalisation (x10; NA 0.25). Impulsions (800 nm, 1  $\mu$ J, 160 fs, 200 kHz). Vitesse de déplacement 100  $\mu$ m/s. 8 passages laser par trait de réseau. Pas du réseau 20  $\mu$ m. Polarisation du laser de lecture parallèle à la polarisation du laser d'écriture.*

Afin de pouvoir exploiter les résultats de ces simulations numériques, il convient de connaître la courbe de dispersion de l'indice de réfraction de la silice en fonction de la longueur d'onde. Cette courbe est donnée à la figure 5.11. Elle est tirée des documents du fabricant Heraeus donnés pour la silice fondue synthétique et la silice à base de quartz fondu [6]. Ces courbes sont très proches et se complètent afin de donner une courbe presque complète de 185 nm à 3.5  $\mu\text{m}$ .



*Figure 5.11 : Indice de réfraction de la silice amorphe en fonction de la longueur d'onde.*

Le tableau de la figure 5.12 rassemble les résultats des calculs numériques et donne l'indice de réfraction de la silice à chacune des longueurs d'ondes utilisées. La variation d'indice est calculée en prenant l'épaisseur en z des dommages égale à 15  $\mu\text{m}$ .

Longueur d'onde	400 nm	543 nm	633 nm	800 nm
Indice de réfraction de la silice	1,47	1,461	1,457	1,453
Déphasage polarisations parallèles	1,25	1,925	2,175	2,08
Variation d'indice	7,80E-03	1,62E-02	2,13E-02	2,57E-02

*Figure 5.12 : Tableau récapitulatif des variations d'indice induites dans la silice par focalisation d'impulsions laser en fonction de la longueur d'onde.*

Comme on pouvait s'y attendre, après la comparaison des efficacités de diffraction, le déphasage induit par le laser au niveau de chaque ligne de type II augmente de 400 à 633 nm. La variation d'indice de réfraction correspondant augmente régulièrement de 400 à 800 nm. Elle est trois fois plus importante à 800 nm qu'à 400 nm.

Pour le calcul de la diffraction, j'ai fait l'hypothèse que seule la partie fortement biréfringente en tête des dommages intervient dans la diffraction. Cette approximation est sans doute justifiée à 800, 633 et 543 nm par le comportement très fortement biréfringent des réseaux. De plus, après observation en microscopie électronique à balayage, la queue des dommages est apparue très étroite (100 à 200 nm). Les faisceaux à 800, 633 et 543 nm voient peu ce prolongement étroit. Cependant, la biréfringence est moins marquée à 400 nm. De plus, il n'a pas été possible de trouver de bons paramètres à introduire dans les simulations pour que la diffraction calculée recoupe correctement les mesures lorsque la polarisation du faisceau de lecture à 400 nm est perpendiculaire à la polarisation d'écriture.

Il est donc probable que la queue des dommages introduit un petit déphasage. Du fait de sa petite taille ce prolongement affecte uniquement les faisceaux dont la longueur d'onde se rapproche de sa taille transverse. Du fait de sa faiblesse, le déphasage supplémentaire ne joue pas lorsque le faisceau a déjà subi un gros déphasage c'est-à-dire lorsque la polarisation de lecture est parallèle à la polarisation d'écriture. Dans certains cas, pour que la diffraction calculée soit en bon accord avec la diffraction mesurée, il conviendrait donc de considérer que la diffraction est provoquée par deux réseaux consécutifs, de même pas mais dont l'épaisseur, la largeur des traits, leur forme et le déphasage sont différents.

### **5.1.5. Réseaux de diffraction constitué de traits de type I**

Un réseau constitué de traits de dommage de type I a été également éclairé à l'aide d'un laser He:Ne à 633 nm. L'efficacité de diffraction est beaucoup plus faible que les réseaux de type II. Je n'ai pas observé d'effet de biréfringence. Cette différence de comportement est en accord avec les observations faites en microscopie optique entre polariseurs croisés. Alors que les dommages de type II sont très fracturés et fortement biréfringents, ceux du type I sont à peine visibles et peu ou pas biréfringents. Le déphasage induit par les traits du réseau de type I est de l'ordre de  $5.10^{-3}$  à 633 nm.

### **5.1.6. Stabilité des dommages induits**

J'ai voulu connaître la stabilité dans le temps des dommages induits par laser dans la silice. Deux mesures des ordres de diffraction du réseau 3 (type II, 8 passages laser par ligne) à 633 nm réalisées à un an d'intervalle ont donné exactement le même spectre de diffraction.

Un échantillon dans lequel avait été inscrites des lignes de dommages types I et II a été soumis à deux étuvages consécutifs d'une heure à 700°C et 900°C. Les dommages de type I disparaissent sous l'effet de la chaleur alors que ceux du type II ne semblent pas avoir été altérés. Afin de confirmer cette résistance à la chaleur, une couche quasi-homogène inscrite dans une lame de silice a également été soumise à un étuvage de 900°C pendant une heure. Les spectres enregistrés avant et après l'étuvages restent très proches.

Enfin, un réseau de type II (pas 20  $\mu\text{m}$ , objectif (x10; NA 0.25), 1  $\mu\text{J}$  par impulsion) a été utilisé pour diviser le faisceau d'un laser à colorant émettant des impulsions de 120 fs autour de la longueur d'onde 620 nm. Le réseau a alors été soumis à de hautes

intensités de l'ordre de  $1 \text{ GW/cm}^2$  sans dégradation notable de ses caractéristiques alors que les réseaux à base de résine ne peuvent soutenir un tel flux. En adaptant le matériau d'inscription, le pas du réseau, l'intensité des impulsions, l'objectif de microscope, la vitesse de déplacement de l'échantillon ou le nombre de passages laser par trait, il semble possible de fabriquer une large gamme de réseaux en transmission avec des caractéristiques de diffraction très variées et résistant au flux laser et au vieillissement. Les réseaux inscrits par laser femtoseconde dans les verres ont un autre avantage par rapport aux réseaux inscrits en surface. Etant inscrits en volume, ils ne craignent ni les altérations chimiques comme l'oxydation ni les rayures fatales aux autres types de réseaux.

## **5.2. Guides d'onde**

J'ai déjà présenté au chapitre 4 les premiers travaux publiés sur l'utilisation d'impulsions sub-picosecondes pour induire des modifications de structures intéressantes dans des verres. L'augmentation de l'indice de réfraction des verres au point de focalisation d'un faisceau laser femtoseconde a été observée pour la première fois en 1996 par un groupe de Kyoto au Japon [7]. Au début de mes recherches, cette technique d'inscription directe avait déjà été utilisée pour la fabrication de guides d'onde dans les verres [8-11]. Depuis 1998, le nombre de publications sur ce thème [12-22] qui augmente chaque année prouve l'intérêt de la communauté scientifique pour ce domaine d'application qui lie notamment la science des matériaux, l'optique guidée, la propagation non-linéaire et la physique des plasmas.

Le sujet de ma thèse ne consistait pas à fabriquer des guides d'onde. Cependant, pour l'étude de la propagation des impulsions femtosecondes dans la silice, j'ai mis au point un ensemble expérimental me donnant la possibilité de focaliser le faisceau laser avec

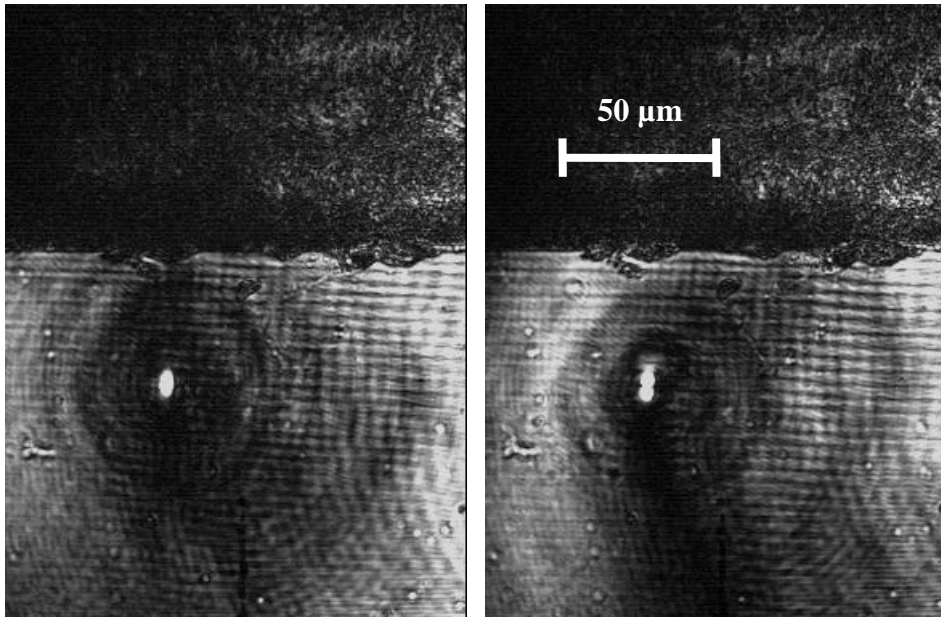
précision dans l'échantillon que je peux également déplacer de façon bien contrôlée suivant les trois axes de l'espace. De plus, mes études sur les seuils d'endommagement et la caractérisation des modifications induites m'ont donné les connaissances nécessaires pour fabriquer des guides d'onde dans la silice en me plaçant entre les deux seuils de dommages. Etant donné l'aspect granuleux et diffusant des dommages de type II, il semble en effet préférable d'utiliser les dommages de type I afin de minimiser les pertes par transmission.

J'ai fabriqué deux types de guides d'onde. L'échantillon peut être déplacé le long de l'axe laser ou bien perpendiculairement [7, 22]. Dans le premier cas, si l'on souhaite fabriquer un guide d'onde de plusieurs mm de long, il est nécessaire de focaliser les impulsions avec un objectif ayant une distance de travail suffisante. Pour cela, j'ai utilisé un objectif (x2.5, NA 0.07) pour induire une modification de type I dans un pavé de silice de 2 cm d'épaisseur. L'énergie par impulsion était comprise entre 0.6 et 1  $\mu$ J. La vitesse de déplacement est typiquement de l'ordre de 100  $\mu$ m/s pour un taux de répétition de 100 à 200 kHz. Notez qu'il est préférable de focaliser le faisceau au niveau de la face arrière au début de l'inscription puis d'éloigner l'échantillon jusqu'à atteindre la face d'entrée. On évite ainsi que la focalisation du faisceau ne soit modifiée par la partie du guide d'onde qu'il vient de fabriquer. Cette technique a l'avantage de fabriquer des guides d'onde de section circulaire. Il convient ensuite de polir les faces pour éliminer un éventuel petit défaut sur la surface dû à l'ablation lorsque le faisceau est focalisé à son niveau. J'ai ainsi pu fabriquer plusieurs modifications cylindriques sur 2 cm de long dans la silice mais je ne suis pas parvenu à un résultat satisfaisant quant au guidage de la lumière. J'ai focalisé, au niveau de l'entrée du guide, un faisceau laser He:Ne à 633 nm. Malgré l'utilisation de différents objectifs pour introduire le faisceau, je ne suis pas parvenu à guider qu'une infime partie de la lumière.



J'ai également induit des modifications de type I en focalisant des impulsions de 0.1 à 0.2  $\mu\text{J}$  (160 fs, 100 kHz) avec un objectif (x20; NA 0.50) et en déplaçant l'échantillon de silice perpendiculairement à l'axe laser. Cette technique possède l'avantage de pouvoir induire des modifications très longues sans être limitée par la distance de travail de l'objectif. Cependant cette technique tend à induire des guides d'ondes de section ovale parfois très allongée [7]. Il semble cependant que la plupart des laboratoires qui ont fabriqué des guides d'ondes dans les verres à l'aide d'impulsions femtosecondes le fassent en déplaçant l'échantillon perpendiculairement à l'axe laser. La lumière semble en effet n'être guidée qu'au centre du guide d'onde. J'ai fabriqué des guides d'onde de 1 cm de long dans une lame fine de silice de 500  $\mu\text{m}$  d'épaisseur puis j'ai réalisé un clivage pour pouvoir atteindre le guide formé. En focalisant le faisceau d'un laser He:Ne (633nm) à l'entrée du guide ou en approchant une fibre optique afin de coupler d'avantage de lumière dans le guide, j'ai pu observer le guidage de la lumière sur les 5 mm de la longueur du guide. La face de sortie de l'échantillon a été imagée sur une caméra (objectif x20; NA 0.50). Il n'est possible de voir une tache lumineuse que lorsque la fibre optique d'injection est placée juste en face d'un des guides (figure 5.13). La taille du mode est de l'ordre de quelques microns.

Cette étude de faisabilité s'est avérée concluante mais guider de la lumière n'est pas suffisant. Il est nécessaire de mesurer les pertes de ce type de guide. Pour l'instant, les laboratoires qui travaillent sur ce thème ne se sont pas avancés sur ce point pourtant essentiel pour les télécommunications.



**Figure 5.13** : *Image de la face de sortie d'une lame de silice dans laquelle un guide d'onde a été fabriqué. Fabrication : objectif (x20; NA 0.50), énergie 0,15  $\mu\text{J}$ , durée d'impulsion 160 fs, taux de répétition 200 kHz, déplacement de l'échantillon perpendiculairement à l'axe laser à la vitesse de 100  $\mu\text{m/s}$ . Profondeur de focalisation 250  $\mu\text{m}$ . Injection de la lumière(633 nm) par fibre optique. Suivant le réglage de l'injection, le mode de propagation peut prendre différentes formes. Gauche : propagation avec un seul lobe. Droite : propagation avec deux lobes.*

## Références bibliographiques

- [1] L. Sudrie, M. Franco, B. Prade and A. Mysyrowicz, *Opt. Comm.* 171, 279 (1999).
- [2] N. Huot, R. Le Harzic, E. Audouard, C. Jonin et P. Laporte, *Photoniques* n°4, 64 (décembre 2001).
- [3] A. Yu. Naumov, C. Przygodzki, X. Zhu and P.B. Corkum, *CLEO'99, CThC2* 356 (1999).
- [4] T. Toma, Y. Furuya, W. Watanabe, K. Itoh, J. Nishii and K-i Hayashi, *Opt. Rev.* 7, 14 (2000).
- [5] Y. Kondo, K. Nouchi, T. Mitsuyu, M. Watanabe, P.G. Kasansky and K. Hirao, *Opt. Lett.* 24, 646 (1999).
- [6] Documentation Heraeus Silice transparente et opaque.
- [7] K.M. Davis, K. Miura, N. Sugimoto and K. Hirao, *Opt. Lett.* 21, 1729 (1996).
- [8] K. Miura, Jianrong Qiu, H. Inouye, T. Mitsuyu and K. Hirao, *Appl. Phys. Lett.* 71, 3329 (1997).
- [9] K. Miura, H. Inouye, Jianrong Qiu, T. Mitsuyu and K. Hirao, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B141*, 726 (1998).
- [10] K. Hirao and K. Miura, *Journal of Non-Crystalline Solids* 239, p91 (1998).
- [11] T. Cardinal, O.M. Efimov, L.B. Glebov, K.C. Richardson, E. Van Stryland, *Conference on Lasers and Electro-Optics, CThL2* p373 (1998).
- [12] D. Homoelle, S. Wielandy, A.L. Gaeta, N.F. Borrelli and C. Smith, *Opt. Lett.* 24, 1311 (1999).
- [13] P. Bado, *Laser Focus World*, 73 (April 2000).
- [14] C. Florea, K.A. Winick, Y. Sikorski, A. Said and P. Bado, *Conference on Laser and Electro-Optics, CMX5* (2000).

- [15] K. Yamada, W. Watanabe, T. Toma, K. Itoh and J. Nishii, *Opt. Lett.* 26, 19 (2001).
- [16] C.B. Schaffer, A. Brodeur, J.F. Garcia and E. Mazur, *Opt. Lett.* 26, 93 (2001).
- [17] C.B. Schaffer and E. Mazur, *Optics and Photonics News*, 20 (April 2001).
- [18] K. Minoshima, A.M. Kowalevich, I. Hartl, E.P. Ippen and J.G. Fujimoto, *Opt. Lett.* 26, 1516 (2001).
- [19] K. Minoshima, I. Hartl, E.P. Ippen and J.G. Fujimoto, *CLEO/QELS, QTuH2* (2001).
- [20] J.W. Chan, T.R. Huser, S.H. Risbud and D.M. Krol, *Conference on Laser and Electro-Optics, CTuM28* (2001).
- [21] N. Huot, R. Le Harzic, E. Audouard et P. Laporte, *Conférence OPTIX* (2001).
- [22] N. Huot, R. Le Harzic, E. Audouard, C. Jonin et P. Laporte, *photoniques*, 33 (Décembre 2001).

## *Perspectives*

Afin de compléter les connaissances sur la propagation longue distance dans les solides transparents, des expériences pompe-sonde pourraient être réalisées pour l'étude du plasma créé. Cependant, la technique des faisceaux colinéaires utilisée au chapitre 3 ne pourrait convenir puisque la propagation de l'impulsion sonde ne suivrait pas du tout celle de l'impulsion pompe. Il faudrait que la sonde soit perpendiculaire à l'axe laser pour pouvoir étudier le plasma tout au long de la propagation.

A propos de cette longue propagation filamentée [1], il reste à comprendre l'influence de la position du foyer de la lentille sur la distance de propagation auto-guidée. Pour l'instant, les résultats du code de propagation ne reflètent pas cette position très critique du foyer. Je peux simplement signaler que cette position modifie la taille du faisceau à l'entrée de l'échantillon et par conséquent l'intensité laser au début de la propagation non-linéaire.

Nous avons vu que les effets thermiques entrent en jeu pour l'apparition des dommages. Les taux de répétition élevés que j'ai principalement employés (1, 100 et 200 kHz) augmentent certainement l'influence des effets thermiques. Il conviendrait donc que chaque impulsion laser voit un matériau vierge afin d'éliminer toute influence de l'accumulation thermique et des dommages créés précédemment. Par exemple, en travaillant à 5 Hz et en déplaçant l'échantillon avec une vitesse supérieure à 100  $\mu\text{m/s}$ , il serait intéressant de refaire les expériences pompe-sonde du chapitre 3 et d'observer le comportement de l'absorption longue durée.

Il conviendrait également d'étudier de façon poussée l'influence du taux de répétition sur les seuils d'endommagement. Le problème technique principal est que, bien souvent,

d'un laser à l'autre, si le taux de répétition change, c'est également souvent le cas des autres caractéristiques du faisceau laser et notamment de la durée d'impulsion. Afin de détecter l'endommagement par une seule impulsion, il faudrait développer un banc de mesure par diffraction capable de détecter les plus petites modifications provoquées par une impulsion unique. Un exemple de ce qui peut être fait est donné par C. Schaffer [2, 3].

J'ai montré que le dommage de type II qui est fortement biréfringent est également légèrement diffusant et constitué de microfractures [4, 5]. Compte tenu de sa forme très allongée et de la différence d'apparence et de taille entre la première partie et la queue, il semble souhaitable d'éviter ce type d'endommagement pour la fabrication de guides d'onde. Or nous avons vu que le taux de répétition a une influence sur l'apparition du dommage de type II. Le seuil d'apparition du type II diminue lorsque le taux de répétition augmente. Il se rapproche donc de celui qui permet d'induire un simple changement d'indice, réduisant alors la gamme d'énergie utilisable entre les deux seuils pour la fabrication de guides d'onde. Dans une optique de fabrication à but de commercialisation, il conviendrait donc de trouver le meilleur compromis entre vitesse d'inscription et souplesse au niveau des paramètres d'interaction. Le type II reste cependant intéressant à étudier du fait de sa forte biréfringence et de la finesse de sa "queue" qui peuvent également être des caractéristiques recherchées pour la fabrication d'éléments optiques.

La première étape d'une étude de l'utilisation des dommages de type I serait la fabrication de guides d'onde plan enterrés suivie d'une mesure des pertes de transmission. Le challenge suivant pourrait être la fabrication de guides d'ondes en trois dimensions.

J'ai montré qu'il est possible de fabriquer des réseaux de diffraction en volume dans la silice [4]. Des réseaux de longue période ont également été inscrits dans des fibres optiques [6, 7] grâce à la focalisation d'impulsions laser IR femtosecondes. Actuellement la fabrication de réseaux de Bragg dans les fibres des télécommunications consiste à insoler la gaine et le cœur de la fibre à l'aide d'interférences dans l'UV. Aux longueurs d'onde utilisées, la silice est absorbante. Le réseau est alors inscrit dans le cœur comme dans la gaine. Le pas des réseaux de Bragg dans les fibres des télécommunications est de 500 nm c'est-à-dire inférieur à la longueur d'onde IR utilisée (800 nm). Cependant, l'utilisation de l'absorption multiphotonique couplée à la focalisation au cœur même de la fibre laisse donc entrevoir d'importants avantages par rapport à la technique actuelle. En effet, il devrait être possible d'induire des modifications uniquement dans le cœur où l'intensité serait suffisante pour provoquer l'absorption multiphotonique. De plus, en travaillant avec des conditions laser proches du seuil d'endommagement il semble possible d'induire des modifications très fines comme l'indique notamment C. Schaffer [2, 8].

## Références bibliographiques

- [1] S. Tzortzakis, L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, A. Couairon and L. Bergé, Phys. Rev. Lett. 87, 213902 (2001).
- [2] C.B. Schaffer, Intercation of femtosecond laser pulses with transparent materials, Thesis, Harvard University, Cambridge, Massachusetts, USA (may 2001).
- [3] C.B. Schaffer, A. Brodeur, N. Nishimurq and E. Mazur, Proc SPIE 3616, 143 (1999).
- [4] L. Sudrie, M. Franco, B. Prade and A. Mysyrowicz, Opt. Comm. 171, 279 (1999).
- [5] L. Sudrie, M. Franco, B. Prade and A. Mysyrowicz, Opt. Comm. 191, 333 (2001).
- [6] Y. Kondo, K. Nouchi, T. Mitsuyu, M. Watanabe, P.G. Kasansky and K. Hirao, Opt. Lett. 24, 646 (1999).
- [7] C. Przygodzki, E. Fertein, H. Delbarre, A. Hidayat, M. Douay et P. Niay, Journées Nationales d'Optique Guidée, 45 (novembre 2000).
- [8] C.B. Schaffer, A. Brodeur, J.F. Garcia and E. Mazur, Opt. Lett. 26, 93 (2001).



## *Conclusion*

Ce travail de thèse a porté sur la propagation non-linéaire des impulsions laser femtosecondes dans la silice. Nos résultats issus des expériences en laboratoire et des calculs numériques sur la propagation des impulsions ont permis d'établir et d'éclaircir de nombreux points dans ce domaine.

Cette thèse fait la première démonstration expérimentale détaillée d'une propagation autoguidée d'impulsions femtosecondes sur plusieurs millimètres de long dans un solide. Cette propagation filamentée bien caractérisée à travers 2 cm de silice est en bon accord avec les simulations du code de propagation développé par A. Couairon. L'intérêt de nos études expérimentales est en effet fortement accru par la comparaison avec les simulations numériques. Cette complémentarité a permis de montrer que la filamentation est dominée par la compétition entre l'ionisation multiphotonique et l'effet Kerr optique. Les autres effets tels que la dispersion de vitesse de groupe, l'ionisation par avalanche et les effets de couplage spatio-temporel ont un rôle secondaire. Cette constatation permet de dire que la filamentation dans la silice est proche de celle étudiée dans l'air. Ce type de propagation ne conduit pas à un endommagement important du matériau traversé malgré les hautes intensités auxquelles il est soumis. Ce phénomène s'explique par la cassure de l'impulsion en deux sous-impulsions de courtes durées. L'avalanche qui n'a pas le temps de se déclencher ne provoque pas de fort endommagement.

J'ai également étudié la propagation d'un faisceau fortement focalisé dans le milieu solide transparent. Cette propagation s'accompagne de l'endommagement irréversible du

matériau. Les traces de dégâts induites par les impulsions ont servi de diagnostics. De nouveau, les résultats numériques ont été confrontés aux résultats expérimentaux. Ces conditions de forte focalisation correspondent à un second type de propagation auto-guidée. Dans ce cas, la filamentation dans la silice peut avoir lieu sur quelques dizaines à quelques centaines de microns. Le diamètre de quelques microns de ces filaments est plus étroit que celui du filament observé sur 2 cm pour lequel le col est compris entre 10 et 40  $\mu\text{m}$ . Contrairement à la propagation "longue distance" dominée par l'ionisation multiphotonique et l'effet Kerr optique, l'effet d'avalanche joue un rôle majeur pour ce type de propagation qui impose au milieu des intensités encore plus élevées. Des expériences de type pompe-sonde ont confirmé la présence d'un plasma dense.

Le couplage entre l'expérience et les simulations a également permis de déterminer les conditions d'endommagement de la silice. Une borne supérieure de la densité électronique a été également obtenue. Des expériences de type pompe-sonde ont montré l'apparition d'une absorption longue durée que j'attribue à un effet thermique.

Le recoupement entre les résultats expérimentaux et ceux du code numérique présente de nombreux intérêts :

- avancer dans la compréhension de la propagation des impulsions très intenses dans les solides transparents.
- avoir une meilleure estimation du rôle joué par chacun des différents phénomènes physiques mis en œuvre lors de la propagation non-linéaire comme l'ionisation multiphotonique, l'avalanche électronique ou la dispersion de vitesse de groupe.
- connaître l'influence de la propagation sur la formation des dégâts en volume.
- obtenir des grandeurs physiques cruciales telles que les intensités lumineuses, la densité électronique et leur localisation dans le matériau transparent.
- améliorer et valider un code de propagation complexe.

- affiner les grandeurs physiques en relation avec les phénomènes de propagation non-linéaires impliqués pour lesquels une recherche bibliographique montre qu'il y a de fortes divergences.

Dans un troisième temps, j'ai étudié les propriétés des défauts créés. J'ai mis en évidence deux types de dommages bien distincts dans la silice amorphe. Alors que le premier qui se forme à faible intensité apparaît comme une simple modification de l'indice du matériau au point de focalisation laser, le second est fortement biréfringent, fracturé et légèrement diffusant. Nous attribuons à nouveau ce type de dommage à des effets d'accumulation thermique.

Enfin, j'ai utilisé mes connaissances sur les seuils d'endommagement et l'aspect des dommages créés dans la silice amorphe pour fabriquer des éléments optiques qui servent à la fois à caractériser les dommages et à montrer d'éventuelles applications des interactions des impulsions laser femtosecondes avec la silice.



## Annexe 1

### L'effet Stark et l'énergie pondéromotrice

Les niveaux d'énergie électronique d'un atome sont modifiés lorsqu'il est soumis à un champ électrique extérieur. Il s'agit de l'effet Stark. Le déplacement Stark peut être assimilé à l'énergie cinétique d'oscillation  $V_e$  de l'électron soumis au champ électrique. On retrouve cette énergie grâce au développement classique suivant partant de l'accélération de l'électron soumis à un champ électrique. Dans le cadre de l'approximation scalaire cela donne :

$$m_e \frac{dv}{dt} = -e\mathcal{E}$$

Si on utilise l'approximation de l'onde monochromatique de pulsation  $\omega_0$  alors on peut écrire :

$$\mathcal{E} = \mathbf{E} \cos(\omega_0 t)$$

et

$$v = \frac{e}{m_e \omega_0} \mathbf{E} \sin(\omega_0 t)$$

Cela donne la valeur quadratique moyenne :

$$\langle v^2 \rangle = \frac{1}{2} \frac{e^2 \mathbf{E}^2}{m_e^2 \omega^2}$$

Alors l'énergie cinétique d'oscillation ou énergie pondéromotrice s'écrit sous la forme:

$$V_e = \frac{1}{2} m_e \langle v^2 \rangle = \frac{e^2 \mathbf{E}^2}{4m_e \omega^2}$$

## Annexe 2

### Etude du second membre de l'équation d'évolution

#### Expression du courant J

Afin d'expliciter le courant J, je vais suivre la méthode de Sprangle et al. [réf 16 chapitre 1] basée sur l'équation de continuité qui exprime la conservation du nombre de particules :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div}(\rho \mathbf{v}) = S \quad (1.22)$$

S est le terme source correspondant à la création d'électrons par le champ électro-magnétique. Il est proportionnel au taux d'ionisation.

L'équation de conservation de la quantité de mouvement peut alors s'écrire sous la forme :

$$m_e \rho \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} = \rho e \mathbf{E} - m_e \nu \mathbf{S} - m_e \rho \omega_c \mathbf{v} \quad (1.23)$$

$\omega_c$  est la fréquence de collision.

En exprimant J sous la forme  $\mathbf{J} = \rho e \mathbf{v}$  on obtient :

$$e \frac{\partial \rho}{\partial t} + \text{div} \mathbf{J} = e S$$

Or les équations de Maxwell indiquent :

$$\text{div} \mathbf{J} = 0$$

Ainsi : 
$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = S$$

Si l'on reporte S dans l'équation (1.20) on a :

$$m_e \rho \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} = \rho e \mathbf{E} - m_e \nu \frac{\partial \rho}{\partial t} - m_e \rho \omega_c \mathbf{v}$$

En multipliant cette équation par e et en divisant par  $m_e$  on arrive à :

$$\frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t} = \frac{e^2}{m_e} \rho \mathbf{E} - \omega_c \mathbf{J} \quad (1.24)$$

Il faut maintenant résoudre cette dernière équation. Pour cela, on réalise le changement de fonction :

$$J = j(t) e^{-\omega_c t}$$

L'équation (1.24) devient :

$$\frac{\partial j}{\partial t} = \frac{e^2}{m_e} \rho(t) E(t) e^{\omega_c t}$$

d'où les expressions de j et de J:

$$j = \frac{e^2}{m_e} \int_{-\infty}^t \rho(t') E(t') e^{\omega_c t'} dt'$$

$$J = \frac{e^2}{m_e} e^{-\omega_c t} \int_{-\infty}^t \rho(t') \xi(t') e^{-i\omega_0 t'} e^{\omega_c t'} dt'$$

$$\text{Alors : } \frac{\partial J}{\partial t} = -\frac{e^2}{m_e} \omega_c \int_{-\infty}^t \rho(t') \xi(t') e^{-i\omega_0 t'} e^{-\omega_c(t-t')} dt' + \frac{e^2}{m_e} \rho(t) \xi(t) e^{-i\omega_0 t}$$

Pour résoudre cette intégrale, on effectue le changement de variable :

$$u = t - t'$$

De plus, on considère que les fonctions  $\xi(t)$  et  $\rho(t)$  varient peu dans le domaine de variation de  $e^{(i\omega_0 - \omega_c)u}$ .

L'évolution de J peut ainsi s'écrire :

$$\frac{\partial J}{\partial t} = \frac{e^2}{m_e} \rho(t) \xi(t) e^{-i\omega_0 t} \left( 1 - \omega_c \int_0^{\infty} e^{(i\omega_0 - \omega_c)u} du \right)$$

On calcule l'intégrale et on trouve :

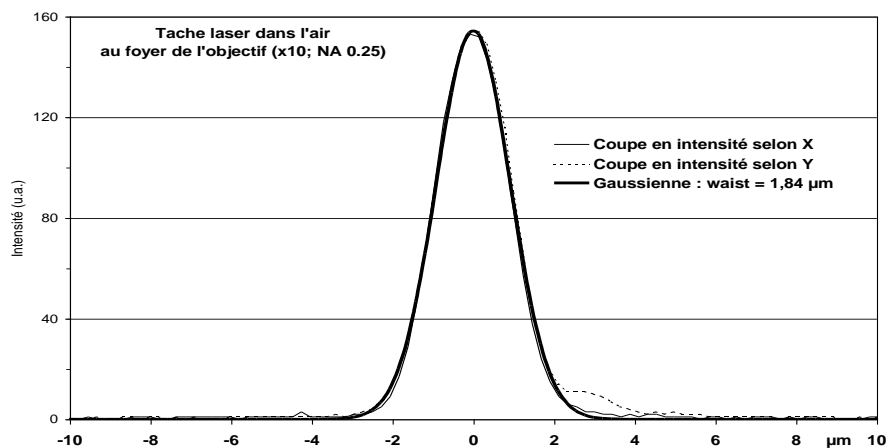
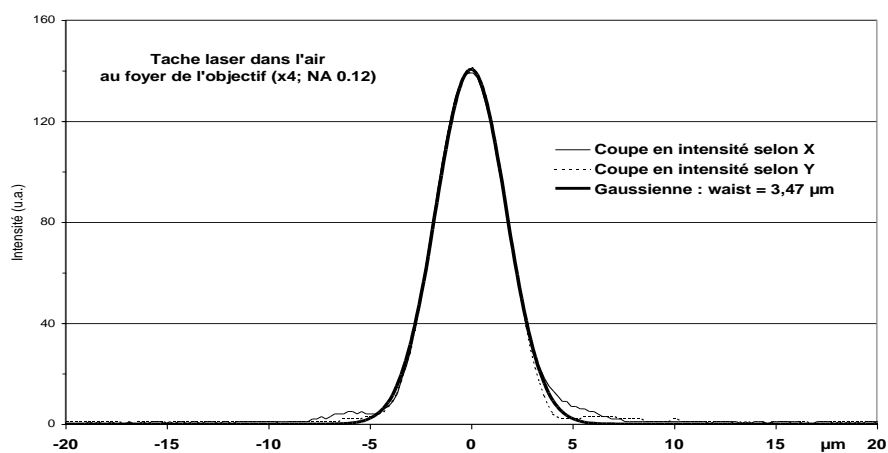
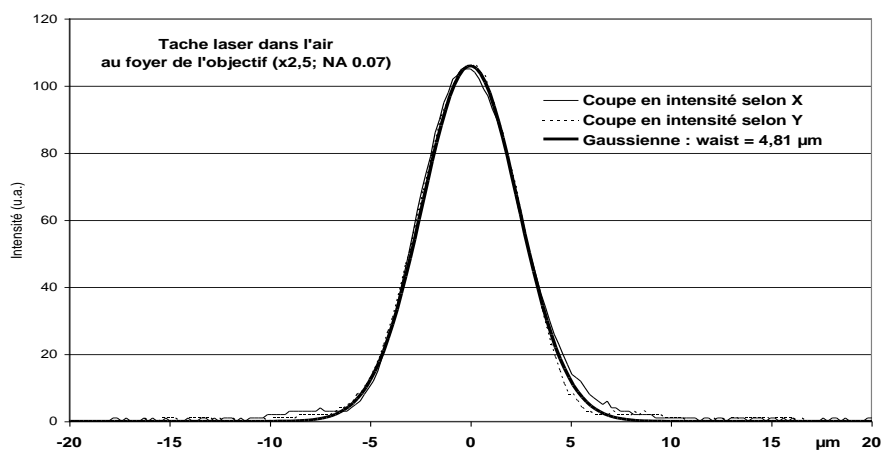
$$\frac{\partial J}{\partial t} = \frac{i\omega_0}{i\omega_0 - \omega_c} \frac{e^2}{m_e} \rho(t) \xi(t) e^{-i\omega_0 t}$$

L'évolution de J peut finalement s'écrire :

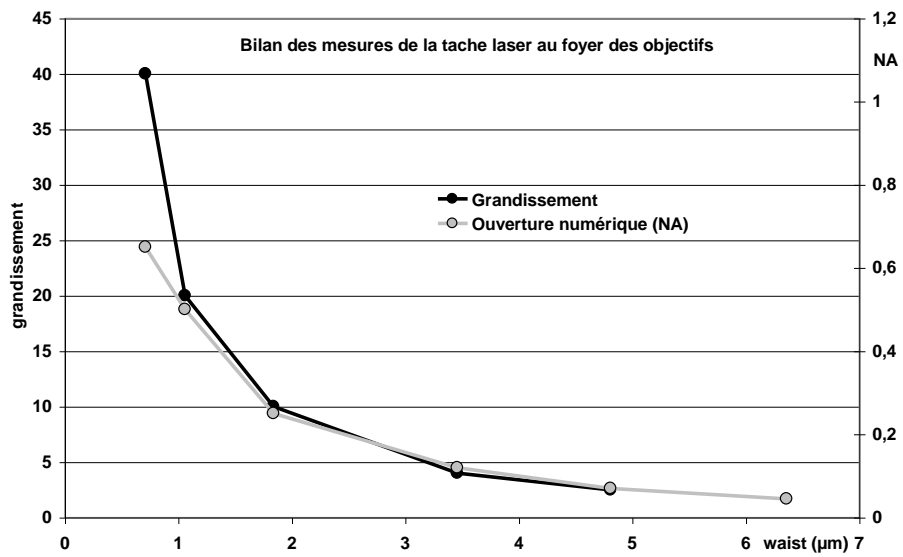
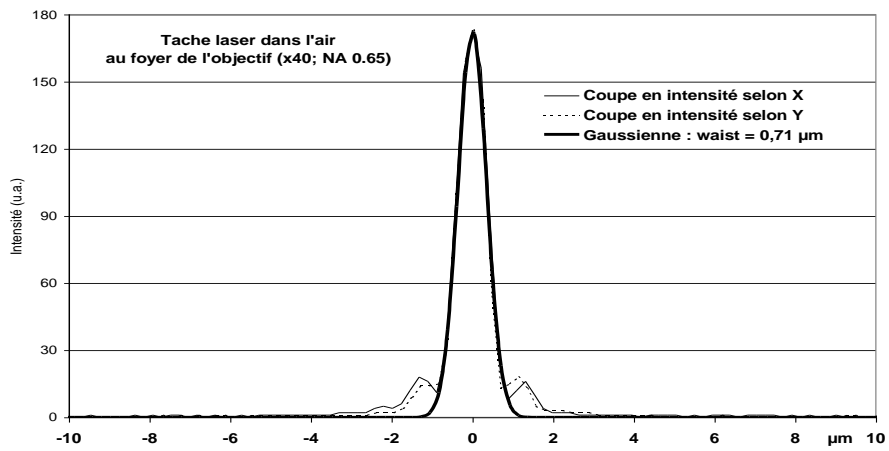
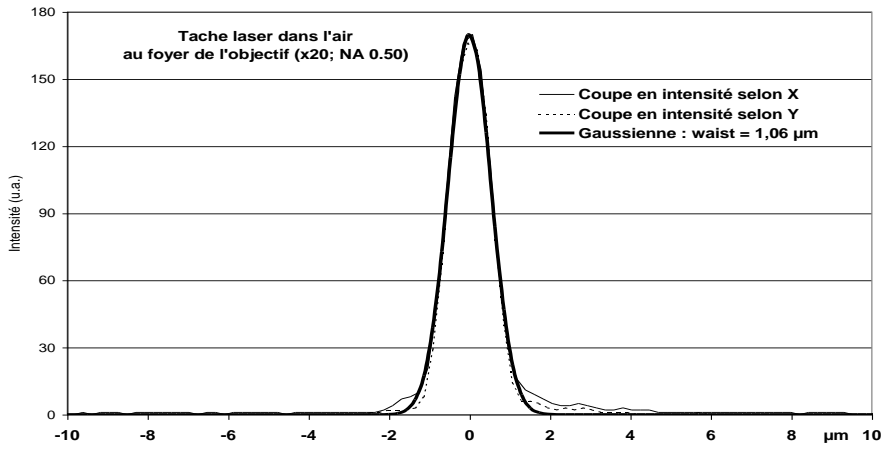
$$\frac{\partial J}{\partial t} = \frac{e^2}{m_e} \omega_0 \frac{\omega_0 - i\omega_c}{\omega_0^2 + \omega_c^2} \rho(t) \xi(t) e^{-i(\omega_0 t - k_0 z)} \quad (1.25)$$

## Annexe 3

Mesure de la taille de la tache laser au foyer de chacun des objectifs de microscope utilisés. Représentation de cette tache par une coupe en intensité de l'enregistrement réalisé sur la caméra linéaire CCD. Ajustement d'une gaussienne pour connaître le "waist" de chaque tache laser.







## Références bibliographiques

- [1] R.R. Alfano and S.L. Shapiro, Phys. Rev. Lett. 24, 584 (1970).
- [2] D. Ashkenasi, H. Varel, A. Rosenfeld, S. Henz, J. Herrmann and E.E.B. Cambell, Appl. Phys. Lett. 72, 1442 (1998).
- [3] P. Audebert, Ph. Daguzan, A. Dos Santos, J.C. Gauthier, J.P. Geindre, S. Guizard, G. Hamoniaux, K. Krastev, P. Martin, G. Petite and A. Antonetti, Phys. Rev. Lett. 73, 1990 (1994).
- [4] P. Bado, Laser Focus World, 73 (April 2000).
- [5] E. Baubeau, C. Le Blanc, F. Salin, Conference on Lasers and Electro-Optics, 407 (1997).
- [6] N. Bloembergen, J. of Nonlinear Optical Physics and Materials 6, 377 (1997).
- [7] N. Bloembergen, IEEE J. Quantum Electron. QE-10, 375 (1974).
- [8] R.W. Boyd, Nonlinear Optics, Editeur Academic Press, Londres, 1992.
- [9] T. Brabec and F. Krausz, Phys. Rev. Lett. 78, 3282 (1997).
- [10] Braun A., G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier and G. Mourou, Opt. Lett. 20, p73 (1995).
- [11] A. Brodeur, C.Y. Chien, F.A. Ilkov, S.L. Chin, O.G. Kosareva and V.P. Kandidov, Opt. Lett. 22, 304 (1997).
- [12] A. Brodeur and S.L. Chin, Phys. Rev. Lett. 80, 4406 (1998).
- [13] A. Brodeur and S.L. Chin, J. Opt. Soc. Am. B 16, 637 (1999).
- [14] G. Bruhat, Cours de physique générale, Optique, Sixième édition par A. Kastler, Editeur Masson, 1992, p361.
- [15] J.H. Campbell et al. in Lasers Induced Damage in Optical Materials, SPIE, 1441, 444 (1990).
- [16] T. Cardinal, O.M. Efimov, L.B. Glebov, K.C. Richardson, E. Van Stryland, Conference on Lasers and Electro-Optics, CThL2, 373 (1998).
- [17] J.W. Chan, T.R. Huser, S.H. Risbud and D.M. Krol, Conference on Laser and Electro-Optics, CTuM28 (2001).
- [18] P. Chernev and V. Petrov, Opt. Lett. 17, 172 (1992).
- [19] R.Y. Chiao, E. Garmire and C.H. Townes, Phys. Rev. Lett. 13, 479 (1964).
- [20] S.-H. Cho, H. Kumagai, K. Midorikawa, Conference on Lasers and Electro-Optics CThM2, 488 (2001).

- [21] P.B. Corkum, P.P. Ho, R.R. Alfano and J.T. Manassah, *Opt. Lett.* 10, 624 (1985).
- [22] P.B. Corkum, C. Rolland and T. Srinivasan-Rao, *Phys. Rev. Lett.* 57, 2268 (1985).
- [23] A. Couairon and L. Bergé, *Phys Plasmas* 7, 193 (2000).
- [24] K.M. Davis, K. Miura, N. Sugimoto and K. Hirao, *Opt. Lett.* 21, 1729 (1996).
- [25] S.A. Diddams, H.K. Eaton, A.A. Zozulya and T.S. Clement, *Opt. Lett.* 23, 379 (1998).
- [26] D. Du, X. Liu, G. Korn, J. Squier and G. Mourou, *Appl. Phys. Lett.* 64, 3071 (1994).
- [27] D. Du, X. Liu and G. Mourou, *Appl. Phys. B* 63, 617 (1996).
- [28] O.M. Efimov, K. Gabel, S.V. Garnov, L.B. Glebov, S. Grantham, M. Richardson and M.J. Soileau, *J. Opt. Soc. Am. B* 15, 193 (1998).
- [29] M.D. Feit, A.M. Rubenchik, B.-M. Kim, L.B. da Silva and M.D. Perry, *Appl. Surf. Sc.* 127-129, 869 (1998).
- [30] D.W. Fradin, N. Bloembergen and J.P. Letellier, *Appl. Phys. Lett.* 22, 636 (1973).
- [31] V. François, F.A. Ilkov and S.L. Chin *Opt. Comm.* 99, 241 (1993).
- [32] K.S. Frederickson, W.E. White, R.G. Wheeland and D.R. Slaughter, *Archives of Dermatology* 129, 989 (1993).
- [33] C. Florea, K.A. Winick, Y. Sikorski, A. Said and P. Bado, *Conference on Lasers and Electro-Optics, CMX5*, 128 (2000).
- [34] E.N. Glezer, M. Milosavljevic, L. Huang, R.J. Finlay, T.-H. Her, J.P. Callan and E. Mazur, *Opt Lett.* 21, 2023 (1996).
- [35] E.N. Glezer, E. Mazur, *Appl. Phys. Lett.* 71, 882 (1997).
- [36] A.L. Gaeta, *Phys. Rev. Lett.* 84, 3582 (2000).
- [37] S. Henz and J. Herrmann, *Phys. Rev. Lett.* 86, 1003 (2001).
- [38] Heraeus Silice transparente et opaque documentation.
- [39] K. Hirao and K. Miura, *Journal of Non-Crystalline Solids* 239, p91 (1998).
- [40] D. Homoelle, S. Wielandy, A.L. Gaeta, N.F. Borrelli and C. Smith, *Opt. Lett.* 24, 1311 (1999).
- [41] N. Huot, R. Le Harzic, E. Audouard, C. Jonin et P. Laporte, *Photoniques* n°4, 64 (décembre 2001).

- [42] N. Huot, R. Le Harzic, E. Audouard, C. Jonin et P. Laporte, *photoniques*, 33 (Décembre 2001).
- [43] N. Huot, R. Le Harzic, E. Audouard et P. Laporte, *Conférence OPTIX* (2001).
- [44] S.C. Jones, P. Braunlich, R.T. Casper, X.-A. Shen and P. Kelly, *Opt Eng* 28, 1039 (1989).
- [45] P.G. Kazansky, H. Inouye, T. Mitsuyu, K. Miura, J. Qiu, K. Hirao and F. Starrost, *QELS'00, QFA3* p242.
- [46] P.G. Kazansky, H. Inouye, T. Mitsuyu, K. Miura, J. Qiu, K. Hirao and F. Starrost, *Phys. Rev. Lett.* 82, 2199 (1999).
- [47] L.V. Keldysh, *Soviet Physics JETP* 20, 1307 (1965).
- [48] Y. Kondo, T. Suzuki, H. Inouye, K. Miura, T. Mitsuyu and K. Hirao, *Jpn. J. Appl. Phys.* 37, L94 (1998).
- [49] Y. Kondo, K. Nouchi, T. Mitsuyu, M. Watanabe, P.G. Kasansky and K. Hirao, *Opt. Lett.* 24, 646 (1999).
- [50] I.G. Koprinkov, A. Suda, P. Wang, K. Midorikawa, *Phys. Rev. Lett.* 84, 3847 (2000).
- [51] M. Lenzner, J. Kruger, W. Kautek, F. Krausz, *Appl. Phys. A* 68, 369 (1999).
- [52] M. Lenzner, F. Krausz, J. Krüger and W. Kautek, *Appl. Surf. Sci.* 154-155, 11 (2000).
- [53] M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, Z. Cheng, Ch. Spielmann, G. Mourou, W. Kautek and F. Krausz, *Phys. Rev. Lett.* 80, 4076 (1998).
- [54] M. Li, S. Menon, J.P. Nibarger and G.N. Gibson, *Phys. Rev. Lett.* 82, 2394 (1999).
- [55] D. von der Linde and H. Schüler, *J. Opt. Soc. Am. B* 13, 216 (1996).
- [56] D. von der Linde and K. Sokolowski-Tinten, *Appl. Surf. Sc.* 154-155, 1 (2000).
- [57] F.H. Loesel, J.P. Fischer, M.H. Goetz, C. Horvath, T. Juhasz, F. Noack, N. Suhm and J.F. Bille, *Appl. Phys. B* 66, 121 (1998).
- [58] P.Martin, S. Guizard, Ph. Daguzan, G. Petite, P. D'Olivera, P. Meynadier and M. Perdrix, *Phys. Rev. B* 55, 5799 (1997).
- [59] J. Marburger, *Self-focusing Theory*, *Prog. Quantum Electron.* 4, 35 (1975).
- [60] M. May et A-M Cazabat, *Optique*, *Licence de Physique*, Editeur Dunod, Paris, 1996, p23.
- [61] K. Minoshima, A.M. Kowalevich, I. Hartl, E.P. Ippen and J.G. Fujimoto, *Opt. Lett.* 26, 1516 (2001).

- [62] K. Minoshima, I. Hartl, E.P. Ippen and J.G. Fujimoto, CLEO/QELS, QTuH2 (2001).
- [63] K. Miura, Jianrong Qiu, H. Inouye, T. Mitsuyu and K. Hirao, Appl. Phys. Lett. 71, 3329 (1997).
- [64] K. Miura, H. Inouye, Jianrong Qiu, T. Mitsuyu and K. Hirao, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B141, 726 (1998).
- [65] M. Mlejnek, E.M. Wright and J.V. Moloney, Opt. Lett. 23, 382 (1998).
- [66] C. Momma, S. Nolte, B.N. Chichkov, F.v. Alvensleben and A. Tünnermann, Appl. Surf. Sci. 109-110, 15 (1997).
- [67] E.T.J. Nibbering, M.A. Franco, B.S. Prade, G. Grillon, C. Le Blanc and A. Mysyrowicz, Opt. Comm. 119, 479 (1995).
- [68] E.T.J. Nibbering, P.F. Curley, G. Grillon, B. Prade, M. Franco, F. Salin and A. Mysyrowicz, Opt. Lett. 21, 62 (1996).
- [69] M.D. Perry and G. Mourou, Science 264, 917 (1994).
- [70] B. Poumellec, Ph. Guénot, R. Nadjo, B. Keita and M. Nicolardot, J. of Lithwave Technology 17, 1357 (1999).
- [71] C. Przygodzki, E. Fertein, H. Delbarre, A. Hidayat, M. Douay et P. Niay, Journées Nationales d'Optique Guidée, 45 (novembre 2000).
- [72] F. Quéré, Thèse de Doctorat, Université Paris VI, octobre 2000, Etudes des mécanismes d'excitation électronique associés au claquage des diélectriques induit par un champ laser intense.
- [73] J. Qiu, K. Miura and K. Hirao, Jpn. J. Appl. Phys. 37, 2263 (1998).
- [74] J.K. Ranka and A.L. Gaeta, Opt. Lett. 23, 534 (1998).
- [75] J.K. Ranka, R.W. Schirmer and A.L. Gaeta, Phys. Rev. Lett. 77, 3783 (1996).
- [76] C.B. Schaffer, A. Brodeur, J.F. Garcia and E. Mazur, Opt. Lett. 26, 93 (2001).
- [77] C.B. Schaffer, Intercation of femtosecond laser pulses with transparent materials, Thesis, Harvard University, Cambridge, Massachusetts, USA (may 2001).
- [78] C.B. Schaffer and E. Mazur, Optics and Photonics News, 20 (April 2001).
- [79] C.B. Schaffer, A. Brodeur, N. Nishimurq and E. Mazur, Proc SPIE 3616, 143 (1999).
- [80] J. Schjødt-Eriksen, J.V. Moloney, E.M. Wright, Q. Feng and P.L. Christiansen, Opt. Lett. 26, 78 (2001).

- [81] L. Shah, J. Tawney, M. Richardson and K. Richardson, *Appl. Surf. Sci.* 183, 151 (2001).
- [82] Y.R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*. John Wiley & Sons, 1984.
- [83] W.L. Smith, *Opt Eng.* 17, 489 (1978).
- [84] M.J. Soileau, W.E. Willimas, N. Mansour and E.W. Van Stryland, *Opt. Eng.* 28, 1133 (1989).
- [85] P. Sprangle, E. Esarey and J. Krall, *Phys. Rev. E* 54, p 4211 (1996).
- [86] L. Sudrie, M. Franco, B. Prade and A. Mysyrowicz, *Opt. Comm.* 171, 279 (1999).
- [87] L. Sudrie, M. Franco, B. Prade and A. Mysyrowicz, *Opt. Comm.* 191, 333 (2001).
- [88] B.C. Stuart, M.D. Feit, A.M. Rubenchik, B.W. Shore and M.D. Perry, *Phys. Rev. Lett.* 74, 2248 (1995).
- [89] B.C. Stuart, M.D. Feit, A.M. Rubenchik, B.W. Shore and M.D. Perry, *J. Opt. Soc. Am. B* 13, 459 (1996).
- [90] B.C. Stuart, M.D. Feit, S. Herman, A.M. Rubenchik, B.W. Shore and M.D. Perry, *Phys. Rev. B* 53, 1749 (1996).
- [91] K.K. Thornber, *J. Appl. Phys.* 52, 279 (1981).
- [92] A.-C. Tien, S. Backus, H. Kapteyn, M. Murnane and G. Mourou, *Phys. Rev. Lett.* 82, 3883 (1999).
- [93] V. Tikhonenko, J. Christou and B. Luther-Davies, *Phys. Rev. Lett.* 76, 2698 (1996).
- [94] T. Toma, Y. Furuya, W. Watanabe, K. Itoh, J. Nishii and K-i Hayashi, *Opt. Rev.* 7, 14 (2000).
- [95] S. Tzortzakis, B. Lamouroux, A. Chiron, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz and S.D. Moustazis, *Opt. Lett.* 25, 1270 (2000).
- [96] S. Tzortzakis, L. Bergé, A. Couairon, M. Franco, B. Prade and A. Mysyrowicz, *Phys. Rev. Lett.* 86, 5470 (2001).
- [97] S. Tzortzakis, L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, A. Couairon and L. Bergé, *Phys. Rev. Lett.* 87, p 213902 (2001).
- [98] H. Varel, D. Ashkenasi, A. Rosenfeld, R. Herrmann, F. Noack and E.E.B. Campbell, *Appl. Phys. A* 62, 293 (1996).
- [99] M. Watanabe, H. Sun, S. Juodkasis, T. Takahashi, S. Matsuo, Y. Suzuki, J. Nishii, H. Misawa, *Jpn. J. Appl. Phys.* 37, L1527 (1998).

- [100] R.M. Wood, *Laser Damage in Optical Materials* (Hilger, Boston, 1986).
- [101] E. Yablonovitch and N. Bloembergen, *Phys. Rev. Lett.* 29, 907 (1972).
- [102] K. Yamada, W. Watanabe, T. Toma, K. Itoh and J. Nishii, *Opt. Lett.* 26, 19 (2001).
- [103] A. Yu. Naumov, C. Przygodzki, X. Zhu and P.B. Corkum, *Conference on Lasers and Electro-Optics, CThC2*, 356 (1999).
- [104] X. Zhu, D.M. Villeneuve, A. Yu. Naumov, S. Nikumb and P.B. Corkum, *Appl. Surf. Sci.* 152, 138 (1999).
- [105] A.A. Zozulya, S.A. Diddams, A.V. Van Engen and T.S. Clement, *Phys. Rev. Lett.* 82, 1430 (1999).