



**HAL**  
open science

# Ablation laser par double impulsion pico-femtosecondes, mono-bi-chromatique, et multi-perforation de la silice fondue

Kévin Gaudfrin

► **To cite this version:**

Kévin Gaudfrin. Ablation laser par double impulsion pico-femtosecondes, mono-bi-chromatique, et multi-perforation de la silice fondue. Physique [physics]. Université de Bordeaux, 2020. Français. NNT : 2020BORD0280 . tel-03329603

**HAL Id: tel-03329603**

**<https://theses.hal.science/tel-03329603>**

Submitted on 31 Aug 2021

**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.

École doctorale des Sciences Physiques et de l'Ingénieur

# THÈSE

Pour obtenir le grade de docteur délivré par

**UNIVERSITÉ DE BORDEAUX**

Spécialité Lasers, Matière et Nanosciences

*Présentée par*

**Kévin Gaudfrin**

**Ablation laser par double impulsion pico-femto-  
secondes, mono-bi-chromatique, et  
multiperforation de la silice fondue**

Soutenue publiquement le 10 décembre 2020 devant le jury composé de :

<b>Pr. Inka MANEK-HÖNNINGER</b>	Professeur à l'Université de Bordeaux, CELIA	Présidente
<b>Dr. David GROJO</b>	Directeur de recherche CNRS, Université Aix-Marseille, LP3	Rapporteur
<b>Dr. Razvan STOIAN</b>	Directeur de recherche CNRS, Université de Saint-Étienne, Hubert Curien	Rapporteur
<b>Dr. Stéphane GUIZARD</b>	Chercheur CEA, Université Paris-Saclay, IRAMIS	Examineur
<b>Pr. Nadjib SEMMAR</b>	Professeur à l'Université d'Orléans,	Examineur
<b>Dr. Laura GEMINI</b>	Ingénieur chercheur, ALPhANOV	Examinatrice
<b>Dr. Guillaume DUCHATEAU</b>	Chercheur CEA, Université de Bordeaux, CELIA	Directeur de thèse
<b>Dr. John LOPEZ</b>	Ingénieur de recherche CNRS, Université de Bordeaux, CELIA	Co-encadrant de thèse





# REMERCIEMENTS

---

Ce travail de thèse a été mené entre le laboratoire CELIA et le centre technologique ALPhANOV, je tiens donc à remercier respectivement leur directeur : Éric Mevel et Benoît Appert-Collin pour m'avoir accueilli et permis d'effectuer ces travaux de thèse.

C'est grâce à l'ensemble des personnes qui m'ont accompagné durant ces trois années que j'ai pu mener efficacement ces travaux, mais aussi aboutir à de forts résultats qui mèneront à un impact certain sur les choix futurs pour la technologie et les procédés laser. C'est pour cette raison que je souhaite vivement remercier toutes les personnes qui ont contribué directement ou indirectement aux fruits de mes travaux.

Je souhaite en premier remercier mon directeur de thèse Dr. Guillaume Duchateau. Déjà un grand merci pour avoir accepté de diriger cette thèse. Tu ne me connaissais pas, tu m'as fait confiance et cru en moi et je te remercie pour ça. J'ai passé trois excellentes années à tes côtés, tu m'as appris tant de choses sur le développement de code, les processus physiques, la modélisation en général, comment s'assurer qu'un modèle est valide et tant d'autres choses... Ce sont des compétences que je n'avais pas du tout. Tu as su me procurer une autonomie dans ces domaines et je te remercie pour tout cela ! Je te remercie également pour tous ces moments d'échanges : nos réunions, nos sessions d'articles, nos échanges réguliers. Je te remercie pour ta très grande réactivité ! J'avoue que c'est très impressionnant, tu réponds présent à la moindre sollicitation de tous tes doctorants peu importe ta charge de travail et tu te rends disponible très rapidement, je suis admiratif. J'avais en tête de te montrer au moins une fois dans ta vie des photons synchrones, mais avec les derniers événements (covid) et la charge de travail, je n'ai pas pu t'amener au laboratoire, qui sait peut être sur une prochaine collaboration !

Dr. John Lopez, tu as été co-encadrant pour la thèse, je souhaite également te remercier pour cela ! On se connaît tous les deux depuis un peu plus longtemps. Tu m'avais pris sous ton aile pour mon stage de fin d'études de Master 2. J'étais déjà pour la thèse parfaitement autonome d'un point de vue procédé laser en ce qui concerne la partie expérimentale grâce à mon année d'ingénieur passée à ALPhANOV avant de commencer cette thèse, mais aussi et surtout, je le dois en partie aussi grâce au stage que tu m'avais proposé ou j'ai pu toucher à tout : texturation laser, découpe, mise en forme spatiale du faisceau laser, polissage, utilisation des divers outils de métrologie, utilisation du poste, polissage et bien d'autres... Je voudrais donc te dire un très grand merci ! Je n'oublierai pas tes petites anecdotes quotidiennes, nos sorties sportives le midi avec les collègues, ce sont de très bons moments, donc merci encore ! Dommage qu'en plus de la soutenance de thèse il n'y ait pas eu une épreuve de semi car avec nos 13 km tous les deux jours sur la fin de thèse, j'aurai été plus que près !

Guillaume et John, j'ai énormément aimé travailler avec vous, et je n'oublierai pas toutes nos discussions passées à nous trois. Je souhaite également vous remercier tous les deux pour m'avoir soutenus durant ces trois années, car une thèse c'est les montages russes, avec pleins d'imprévus. Pour ma part, traiter la modélisation et l'expérience cela était une charge de travail considérable et donc je vous remercie infiniment pour l'encouragement quotidien et pour m'avoir surporté dans les moments difficiles !

Je souhaite remercier chaleureusement les rapporteurs Dr. David Grojo et Dr. Razvan Stoian pour avoir accepté de rapporter cette thèse. Vos remarques, questions, nos moments d'échange à la soutenance ont permis d'améliorer la qualité de ce manuscrit, merci. Je remercie également le Pr. Inka Manek-Hönninger, Dr. Stéphano Guizard, Pr. Nadjib Semmar et Dr. Laura Gemini pour avoir accepté d'être membre du jury ainsi que pour nos échanges lors de la soutenance. C'est une grande gratitude pour moi d'avoir pu échanger avec ce jury composé d'expert.

Je remercie également Pedro Gonzalez de Alaiza Martinez, tu as un vrai nom de baron ! Pedro, tu étais en post-doc avec Guillaume pendant le début de ma thèse. Je te remercie pour nos discussions que nous avons eues sur la programmation Fortran et de son fonctionnement. Je ne connaissais rien au Fortran et tu m'as expliqué les subtilités par rapport à d'autres langages de programmation, comment faire un code propre. Tu m'as aussi donné une aide et des conseils précieux pour le développement du modèle thermo-élastique, ta formation accélérée m'a fait gagner énormément de temps et j'ai beaucoup appris, je te remercie pour tout cela !

Je remercie plus généralement tout le laboratoire CELIA, pour l'accueil, la convivialité. J'ai également pu m'apercevoir qu'il était primordial de discuter avec ses collègues même ceux qui ne partagent pas les mêmes activités. L'expérience acquise par chacun, dans le codage, la physique sert tous les domaines, et discuter apporte des idées parfois des solutions, cela permet également d'évaluer et se projeter sur une problématique, un sujet d'étude, etc. Je remercie également tous mes collègues thésard du CELIA et ceux avec qui j'ai partagé le bureau : Adrian, Paul, Romain Quentin, merci à vous pour tous ces bons moments ! Je remercie également l'ancien mathématicien du CELIA Bruno Dubroca. Il m'a permis d'interfacer la bibliothèque PETCS avec mon code thermo-élastique que j'ai développé, cela n'a pas été chose facile, un grand merci à toi !

Je remercie ALPhANOV et mes collègues Rainer, Marc, Laura, Bastian, Samba, Mino, Alice, Donetsi, Simon, Alexandra, Benjamin ... et toutes les autres personnes pour ces années passées avec vous. Je souhaite également remercier Amplitude Système et plus précisément : Éric, Clemens, Martin, Guillaume et Konstantin pour leur collaboration dans le projet, nos discussions, nos réunions et échanges, car c'était également un vrai plaisir de travailler avec vous.

Je voudrais également remercier tous mes amis et plus particulièrement Alexis Guernion qui est pour moi un cousin de cœur comme on le dit et qui a suivi ma soutenance de thèse pendant son intervention de police sur Zoom ! Tu as dû paraître ce jour-là aux yeux des délinquants que tu as arrêtés, un policier très atypique ! Pour finir, je souhaite remercier toute ma famille, mon frère jumeau Florian, ma sœur Doriane, mes parents Céline et Hervé pour m'avoir supportée dans ce projet professionnel, car vous comptez infiniment pour moi et je vous aime très fort. Un grand merci également à mes grands-parents : Jacques et Marie José Decrion et Noelle Gaudfrin que j'appelle d'ailleurs mamie tracteur. C'était un grand plaisir de vous avoir à ma soutenance malgré le fait qu'elle a été réalisée en distanciel. J'aimerais également avoir une pensée pour mon papi Noël Gaudfrin parti bien trop tôt dans ma jeunesse, mais avec qui j'ai d'excellents souvenirs de mon enfance et j'espère que tu es fier de tous tes petits enfants !

Merci à tous, et bonne lecture !

# TABLE DES MATIÈRES

---

Remerciements.....	i
Table des matières .....	iii
Liste des abréviations.....	vii
Liste des symboles.....	ix
Avant-propos .....	1
Introduction générale .....	3
Chapitre 1. État de l'art.....	9
1. Matériau diélectrique et mécanismes d'interaction sous flux laser sub-picoseconde .....	11
1.1. Le matériau diélectrique .....	11
1.2. Dynamique électronique.....	14
1.2.1. La photoionisation.....	15
1.2.2. Chauffage, ionisation par impact et avalanche électronique.....	19
1.2.3. Relaxation électronique.....	22
1.2.4. Évolution de la densité électronique en bande de conduction.....	23
1.3. Polarisabilité du matériau et fonction diélectrique.....	24
1.3.1. Polarisabilité du matériau. ....	24
1.3.2. Fonction diélectrique, modèle de Drude et propriétés optiques .....	29
1.4. Calcul du dépôt d'énergie .....	32
2. Réponse macroscopique de la matière après irradiation laser.....	34
2.1. Diffusion de la chaleur .....	34
2.2. Réponse thermomécanique du matériau.....	36
2.3. Critère de rupture.....	39
3. Ablation laser et paramètres d'influences .....	43
3.1. Mécanisme d'ablation .....	43
3.2. Influence des paramètres laser sur l'ablation.....	44
3.3. Mise en forme temporelle .....	49
4. Synthèse .....	58

<b>Chapitre 2. Ablation de la silice fondue par double impulsion laser femtosecondes mono-chromatique.....</b>	<b>59</b>
1. Dispositif expérimental et protocole.....	61
1.1. Dispositif expérimental : laser, ligne à retard, métrologie et focalisation.....	61
1.2. Protocole d'analyse.....	64
2. Développement du modèle de dynamique électronique pour le calcul du dépôt d'énergie.....	66
3. Résultats.....	71
3.1. Transmissions et modifications optiques au seuil en fluence.....	71
3.2. Volume ablaté.....	73
3.3. Profondeur d'ablation.....	74
4. Discussion.....	75
4.1. Influence du délai d'impulsion à impulsion.....	75
4.2. Influence de l'état de polarisation.....	78
4.3. Effet de la coopération entre le délai d'impulsion à impulsion et l'état de polarisation.....	79
5. Synthèse.....	82
<b>Chapitre 3. Ablation de la silice fondue par double impulsion laser picoseconde bi-chromatique.....</b>	<b>85</b>
1. Dispositif expérimental et protocole.....	86
2. Modèle de dynamique électronique.....	92
3. Résultats en double irradiation à 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm) et 470 fs (515 nm) - 10 ps (1030 nm).....	96
3.1. Transmission optique à 1030 nm et à 515 nm.....	97
3.2. Volume ablaté.....	102
3.3. Profondeur et profile d'ablation.....	109
4. Discussion.....	112
4.1. Double irradiation à 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm).....	114
4.2. Double irradiation à 470 fs (515 nm) et 10 ps (1030 nm).....	122
5. Synthèse.....	124
<b>Chapitre 4. Mise en forme spatiale, accumulation thermique et contraintes.....</b>	<b>127</b>
1. Dispositif expérimental et protocole.....	128
2. Analyse des échantillons en microscopie normale et en polarisation croisée.....	136
2.1. Fissuration et contraintes résiduelles.....	137
2.2. Endommagement inter-faisceaux sous-surfacique en segment.....	141
3. Modélisation de la formation des contraintes par une approche thermo-élastique.....	144

3.1. Description du modèle thermo-élastique .....	144
3.2. Résultats de simulation.....	147
3.2.1. Résultats thermiques.....	148
3.2.2. Résultats thermo-élastiques.....	151
4. Discussion.....	158
5. Synthèse .....	161
Conclusion générale et perspectives.....	163
Annexe A. Mesure de l'intensité spatiale du faisceau sur cible pour des faisceaux monochromatiques.....	169
Annexe B. Calcul de l'absorption linéaire induite par des électrons libres.....	173
Annexe C. Calculs de la polarisation résultante dans les configurations PCCR et PLC .....	175
Annexe D. Mesure de l'intensité spatiale du faisceau sur cible pour des faisceaux bi-chromatiques.....	179
Annexe E. Automatisation des expériences et de l'analyse des données.....	183
1. Instrumentation et automatisation des expériences.....	183
2. Automatisation de l'analyse des données .....	185
Annexe F. Schéma numérique et validation du modèle thermique.....	189
Annexe G. Microscope à polarisation croisée.....	191
Annexe H. Schéma numérique et validation du modèle thermo-élastique.....	193
1. Résolution de l'équation de Navier.....	193
1.1. Les équations .....	193
1.2. Construction du schéma numérique et discrétisation de l'Eq. (82) .....	194
1.3. Propriété de la matrice .....	196
2. Équation sans force extérieure .....	197
2.1. Les équations .....	197
2.2. Construction du schéma numérique et discrétisation de l'Eq. (89) .....	198
2.3. Propriété de la matrice .....	199
3. Résolution du système .....	200

4. Résolution analytique des contraintes sans force extérieure dans un repère polaire. ....	201
5. Vérification .....	204
Références bibliographiques.....	211
Liste des communications.....	223
Abstract .....	225
Résumé .....	226

---

## LISTE DES ABRÉVIATIONS

---

ALPhANOV.....	Centre technologique optique et lasers du pôle de compétitivité aquitain ALPHA – Route des Lasers & des Hyperfréquences.
AS-TGV.....	Projet DGA Rapid ( <i>Advanced and Smart laser technology for Through Glass Via</i> )
CEA.....	Commissariat à l'Energie Atomique et aux énergies alternatives
CELIA.....	Centre Lasers Intenses et Applications
CNRS.....	Centre National de la Recherche Scientifique
CPA.....	Amplification à dérive de fréquence ( <i>Chirped Pulse Amplification (CPA) en anglais</i> )
DGA.....	Direction Générale de l'Armement
IOA.....	Institut d'Optique d'Aquitaine
LASER.....	Amplification de la lumière par émission stimulée ( <i>Light Amplification by Stimulated Emission Radiation</i> )
Nd:YAG.....	<i>Neodymium-Doped Yttrium Aluminium Garnet</i>
PCCR.....	Polarisation Circulaire Contre Rotative
PLC.....	Polarisation Linéaire Croisée
SPM.....	Auto-modulation de phase ( <i>Self Phase Modulation en anglais</i> )
STE.....	Exciton autopiégé ( <i>Self Trapped Exciton (STE) en anglais</i> )
UV.....	Onde électromagnétique dans la partie ultraviolet du spectre électromagnétique (100-380 nm)
ZAT.....	Zone Affectée Thermiquement





# LISTE DES SYMBOLES

---

## CONSTANTES PHYSIQUES

$c$ [ $\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$ ]	.....	Célérité de la lumière ( $c = 299\,792\,458 \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ )
$\epsilon_0$ [ $\text{F} \cdot \text{m}^{-1}$ ]	.....	Permittivité diélectrique du vide ( $\epsilon_0 = 8,854\,187\,82 \cdot 10^{-12} \text{ F} \cdot \text{m}^{-1}$ )
$\mu_0$ [ $\text{H} \cdot \text{m}^{-1}$ ]	.....	Perméabilité magnétique du vide ( $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{ H} \cdot \text{m}^{-1}$ )
$e$ [C]	.....	Charge de l'électron ( $e = 1,602\,176\,634 \cdot 10^{-19} \text{ C}$ )
$k_B$ [ $\text{J} \cdot \text{K}^{-1}$ ]	.....	Constante de Boltzmann ( $k_B = 1,380\,648\,52 \cdot 10^{-23} \text{ J} \cdot \text{K}^{-1}$ )
$m_e$ [ $\text{kg}$ ]	.....	Masse d'un électron ( $m_e = 9,10956 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$ )
$h$ [ $\text{J} \cdot \text{s}$ ]	.....	Constante de Planck ( $h = 6,626\,070\,15 \times 10^{-34} \text{ J} \cdot \text{s}$ )

## CARACTÉRISTIQUES DU FAISCEAU, DES IMPULSIONS

$\vec{B}$ [T]	.....	Champ magnétique
$\vec{E}$ [ $\text{V} \cdot \text{m}^{-1}$ ]	.....	Champ électrique
$E_l$ [J]	.....	Énergie de l'impulsion laser
$P_{cr}$ [W]	.....	Puissance critique
$P_m$ [W]	.....	Puissance Moyenne
$k_0$ [ $\text{m}^{-1}$ ]	.....	Vecteur d'onde
$\Delta\phi_{NL}$ [rad]	.....	Déphasage non linéaire induit par l'effet Kerr
$I$ [ $\text{W} \cdot \text{m}^{-2}$ ]	.....	Intensité laser
$ON$ [ $\emptyset$ ]	.....	Ouverture numérique
$f$ [mm]	.....	Distance focale
$\lambda$ [nm]	.....	Longueur d'onde centrale
$\nu$ [Hz]	.....	Fréquence de répétition des impulsions laser
$\tau$ [s]	.....	Durée de l'impulsion laser à mi-hauteur (FWHM)
$\varphi$ [rad]	.....	Phase d'une onde électromagnétique

$\omega$ [rad · s <sup>-1</sup> ]	.....	Pulsation de l'onde électromagnétique.
$\beta_1$ [s · m <sup>-1</sup> ]	.....	Développement au premier ordre du coefficient de dispersion
$\beta_2$ [s <sup>2</sup> · m <sup>-1</sup> ]	.....	Développement au deuxième ordre du coefficient de dispersion

## DESCRIPTION DU MATÉRIAU

$\vec{P}$ [C · m <sup>-2</sup> ]	.....	Polarisation d'un milieu
$\vec{P}_L$ [C · m <sup>-2</sup> ]	.....	Polarisation linéaire d'un milieu
$\vec{P}_{NL}$ [C · m <sup>-2</sup> ]	.....	Polarisation non linéaire d'un milieu
$\vec{P}_c$ [C · m <sup>-2</sup> ]	.....	Polarisation induite par les électrons de conduction
$\vec{P}_v$ [C · m <sup>-2</sup> ]	.....	Polarisation induite par les électrons de valence
$\chi^{(i)}$ [m <sup>i-1</sup> · V <sup>-i+1</sup> ]	.....	Susceptibilité diélectrique d'ordre i
$\chi_c [\emptyset]$	.....	Susceptibilité diélectrique induite par les électrons de conduction
$\chi_v [\emptyset]$	.....	Susceptibilité diélectrique induite par les électrons de valence
$L$ [m]	.....	Distance de propagation de la lumière
$N$ [∅]	.....	Indice optique complexe
$n$ [∅]	.....	Partie réelle de l'indice de réfraction N
$k$ [∅]	.....	Partie imaginaire de l'indice de réfraction N
$n_2$ [∅]	.....	Indice optique non linéaire d'ordre 2
$R$ [∅]	.....	Coefficient de transmission
$T$ [∅]	.....	Coefficient de réflexion
$\rho$ [Kg · m <sup>-3</sup> ]	.....	Masse volumique
$c_e$ [J · K <sup>-1</sup> · Kg <sup>-1</sup> ]	.....	Capacité calorifique massique électronique
$c_i$ [J · K <sup>-1</sup> · Kg <sup>-1</sup> ]	.....	Capacité calorifique massique ionique
$T_e$ [K]	.....	Température électronique
$T_i$ [K]	.....	Température ionique
$\lambda_e$ [W · m <sup>-1</sup> · K <sup>-1</sup> ]	.....	Conductivité thermique électronique
$\lambda_i$ [W · m <sup>-1</sup> · K <sup>-1</sup> ]	.....	Conductivité thermique ionique
$\gamma$ [∅]	.....	Taux de couplage électron-phonon
$D$ [m · s <sup>-2</sup> ]	.....	Coefficient de diffusivité thermique
$T_l$ [K]	.....	Température de la matrice
$E_{yg}$ [Pa]	.....	Module de Young
$\vec{u}$ [m]	.....	Vecteur déplacement
$\alpha$ [K <sup>-1</sup> ]	.....	Coefficient de dilatation thermique linéaire
$\bar{\epsilon}$	.....	Tenseur déformation de rang 2
$\bar{\sigma}$	.....	Tenseur contrainte de rang 2
$\nu$ [∅]	.....	Coefficient de Poisson

$\vec{f}$ [N].....	Vecteur force
$\sigma_{ij}$ [Pa].....	Élément du tenseur $\bar{\sigma}$ suivant ij
$\sigma_I$ [Pa].....	Contrainte principale maximum
$\sigma_{II}$ [Pa].....	Contrainte principale minimum
$\tau_{max}$ [Pa].....	Cisaillement maximal
$L_t$ [Pa].....	Limite en traction
$L_c$ [Pa].....	Limite en compression
$N_e$ [m <sup>-3</sup> ].....	Densité électronique en bande de conduction
$\tau_{rec}$ [s].....	Temps de recombinaison électronique
$\tilde{\alpha}$ [s <sup>-1</sup> ].....	Fréquence de collision des électrons de conduction avec les électrons de valence
$n_v$ [m <sup>-3</sup> ].....	Population électronique en bande de valence
$\rho_k$ [m <sup>-3</sup> ].....	Population électronique en bande de conduction d'un niveau d'énergie $E_k$
$W_{PI}$ [m <sup>-3</sup> · s <sup>-1</sup> ].....	Taux de photoionisation
$m_e^*$ [Kg].....	Masse effective de l'électron
$E_{BG}$ [eV].....	Énergie de la bande interdite
$E_{BG}^*$ [eV].....	Énergie effective de la bande interdite
$n_{ph}[\emptyset]$ .....	Ordre multiphotonique
$\gamma$ [∅].....	Paramètre d'adiabacité de Keldysh
$\sigma_1$ [m <sup>4</sup> · V <sup>-4</sup> · s].....	Taux d'absorption d'un photon par électron dans la bande de conduction
$\vec{r}_e$ [m].....	Vecteur position de l'électron libre
$\tau_c$ [s].....	Temps de collision
$v$ [m · s <sup>-1</sup> ].....	Vitesse de l'électron
$\vec{D}$ [C · m <sup>-2</sup> ].....	Vecteur déplacement électrique
$\varepsilon_v$ [∅].....	Fonction diélectrique des électrons de valence
$\varepsilon_c$ [∅].....	Fonction diélectrique des électrons de conduction
$\varepsilon_r$ [∅].....	Permittivité relative du matériau
$\varepsilon_1$ [∅].....	Partie réelle de la permittivité relative du matériau
$\varepsilon_2$ [∅].....	Partie imaginaire de la permittivité relative du matériau
$\varepsilon$ [F · m <sup>-1</sup> ].....	Permittivité absolue
$\xi_1$ [m <sup>-1</sup> ].....	Partie réelle du vecteur d'onde
$\xi_2$ [m <sup>-1</sup> ].....	Partie imaginaire du vecteur d'onde
$\delta$ [m].....	Épaisseur de peau
$Q_{total}$ [J · m <sup>-3</sup> ].....	Densité d'énergie laser absorbée par les électrons



# AVANT-PROPOS

---

Ces travaux de recherche ont été soutenus financièrement par la Convention Industrielle de Formation à la Recherche (Cifre) N°2017/0506 signée entre le centre technologique ALPhANOV et l'Agence Nationale de la Recherche et de la Technologie (ANRT). Ce travail de thèse a été réalisé au sein du laboratoire CELIA et du centre technologique ALPhANOV.

Le laboratoire CELIA (Centre Laser Intenses et Applications) est une unité mixte de recherche située à Talence, dont les tutelles sont l'Université de Bordeaux, le CEA et le CNRS. L'activité scientifique porte sur les thématiques suivantes : (i) Lasers femtosecondes de haute cadence et haute intensité, études en optique des lasers intenses ; (ii) Champs ultra-intenses, collisions ioniques et sources de rayonnement X par plasmas ; (iii) Harmoniques XUV et applications à l'étude des processus ultrabrefs, impulsions attosecondes ; (iv) Interaction laser plasma, physique des plasmas chauds et denses, fusion par confinement inertiel, astrophysique en laboratoire ; (v) Interaction laser-matériaux, écriture directe par laser femtoseconde, procédés lasers multi-matériaux en régime ns/ps/fs, spectroscopies laser et plasma. Le CELIA a été à l'origine de la technologie Yb valorisée par la société Amplitude Systèmes au travers d'une licence de savoir-faire. Il a également été à l'origine du centre ALPhANOV au travers la plateforme d'applications des lasers en Aquitaine (PALA) dont l'activité a été transférée vers ALPhANOV fin 2006 [1].

ALPhANOV est le centre technologique laser et optique mis en place dans le cadre du pôle de compétitivité ALPHA-Route des Lasers et des Hyperfréquences situé à l'Institut d'Optique d'Aquitaine (IOA) sur le campus de Talence. Les missions d'ALPhANOV sont : d'aider au développement d'entreprise en apportant des solutions technologiques innovantes et de favoriser le transfert technologique du laboratoire vers l'industrie en portant à maturité des technologies. ALPhANOV est divisé en quatre départements et regroupe les domaines d'expertise suivants : les procédés laser (département dans lequel j'ai réalisé une partie de cette thèse), les sources et composants laser, les systèmes photoniques et la formation [2].

Ce travail de thèse s'inscrit dans un projet collaboratif nommé AS-TGV (Advanced and Smart laser technology for Through Glass Via) entre le laboratoire CELIA, le centre technologique ALPhANOV et la société Amplitude Systèmes afin de répondre à la problématique industrielle de la multiperforation du verre. Le projet AS-TGV est un projet DGA Rapid commencé en 2017 pour une durée de 4 ans et de financement N°172906052 et N°172906053.



## INTRODUCTION GÉNÉRALE

Nous devons la compacité de la micro-électronique grâce à la miniaturisation des composants électroniques et au développement d'architecture dite 2D, 2.5D ou 3D (Figure 1). L'architecture 3D nécessite une forte densité d'interconnexion entre l'unité mémoire/logique et le circuit, ce qui est obtenu en intercalant un composant appelé *interposer* (en bleu/noir sur l'architecture 3D de la Figure 1). Ce composant ultramince est aujourd'hui en silicium, il est multiperforé par gravure ionique réactive profonde puis isolé et métallisé au niveau des trous. Cependant, pour des raisons techniques et de coût, les industries envisagent fortement d'utiliser des *interposers* en verre pour une partie du marché. L'interposeur en verre permettrait de (i) réduire les coûts de fabrication, car la matière est moins onéreuse. (ii) D'obtenir une meilleure planéité comparé au Silicium. (iii) Le verre est naturellement isolant comparé au silicium, il ne nécessite donc pas de traitement pour le rendre isolant lorsque les wafers sont fins. (iv) Du fait de la propriété naturellement isolante du verre, les courants de fuites sont réduits.

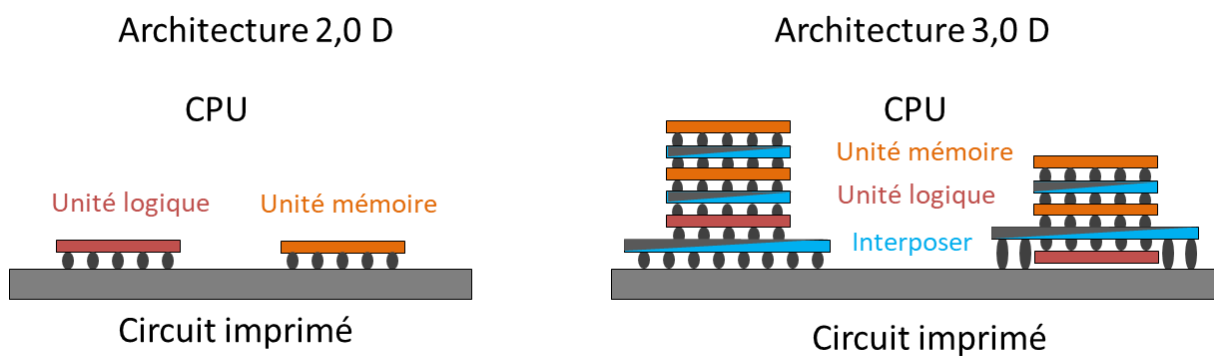


Figure 1. Architecture 2,0 D et 3,0 D utilisé en microélectronique. L'architecture 3.0D est beaucoup plus compacte que l'architecture 2,0 D. Cependant, elle nécessite des interposeurs qui permettent à la fois de connecter et d'isoler les différentes unités mémoire et logique.

Les wafers de silicium sont aujourd'hui percés par gravure ionique réactive profonde, cependant ce procédé de perçage n'est pas adapté sur les isolants comme le verre, car celui-ci possède des propriétés physiques différentes au silicium et il réagit différemment. Néanmoins, il existe de nombreuses autres techniques de multiperforation : mécanique, chimique, par gravure chimique assistée par laser, par laser assisté par eau, et d'autres [3]. La technique de multiperforation par gravure chimique assistée par laser offre des perspectives intéressantes en terme de vitesse de perçage, mais cette technique est très polluante par l'utilisation de solutions chimiques. Une alternative consiste à percer directement le verre par une rafale d'impulsions laser dont les caractéristiques doivent être choisies judicieusement.

Les récents progrès de la technologie des lasers ultra-courts (fs-ps) pourraient être une alternative et ouvrent la voie à de nouvelles techniques non invasives de traitement des matériaux par laser. La brièveté de leur impulsion permet d'atteindre des puissances crêtes élevées qui rendent un matériau



initialement transparent localement opaque et absorbant. En outre, la brièveté de l'impulsion devant les temps caractéristiques de relaxation de la matière permet un dépôt d'énergie localisé. Ces lasers ultra-courts sont utilisés dans de nombreux domaines industriels, notamment l'aéronautique, les appareils médicaux, l'industrie du luxe et l'horlogerie ainsi que la fabrication d'optiques. Cette technologie laser permet également de traiter des matériaux diélectriques transparents avec une qualité et une précision exceptionnelles. Plusieurs applications sont rapportées dans la littérature comme, par exemple, le changement d'indice de réfraction [4], le stockage de données 3D [5–8], la création de guides d'ondes et de réseaux de diffraction [9–12], la fabrication de masques de phase [13,14], le perçage, l'ablation du verre du bas vers le haut dit par « *bottom-up* » en anglais [15] et la découpe de verre sans ablation [16]. L'usinage par impulsion femtoseconde permet ainsi d'obtenir dans le cas d'une ablation, et à la différence des impulsions de type nanoseconde, une bien meilleure qualité d'usinage : dépourvue de bavure, de bourrelet et présentant moins de zones affectées thermiquement. En contrepartie et malgré une excellente efficacité, la quantité de matière ablatée par impulsion reste faible et le temps de traitement est souvent trop long pour répondre aux exigences industrielles. En effet, la problématique Through Glass Via (TGV) est typiquement de percer **5000 à 10000** trous par seconde dans un verre d'épaisseur **30 à 100** microns, avec un diamètre des trous de **10 à 30** microns et un espacement entre trous de **30 à 100** microns. Des dimensions plus petites seront probablement requises dans le futur. Si plusieurs technologies alternatives sont possibles pour des diamètres de trous de **100** microns, elles sont beaucoup moins nombreuses pour des diamètres inférieurs à **30** microns.

Face aux enjeux industriels précédemment évoqués, une solution technologique consiste à utiliser des lasers femtoseconde avec une mise en forme temporelle et/ou spatiale de l'impulsion laser dans le but d'optimiser le dépôt d'énergie et d'augmenter les débits matière. La nature des modifications (changement d'indice, ablation,...) du matériau résulte de l'absorption de l'énergie laser qui est régie par la dynamique des électrons induite par le laser. Aux premiers stades de l'interaction laser-matière, cette dernière comprend les principaux processus suivants : (i) excitation des électrons par absorption non linéaire [17] et ionisation par impact [18] ; (ii) la thermalisation des électrons libres par collision électron-électron et le transfert de l'énergie laser absorbée par les électrons vers la matrice par collision électron-phonon ; (iii) mouvement hydrodynamique et modifications structurales (**10 ps à 10 ns**), puis diffusion thermique (**100 ps à 10 μs**) [19,20]. Ces processus dépendent de l'énergie de l'impulsion laser, de la taille de la zone d'interaction, de la durée d'impulsion, de la longueur d'onde, de la polarisation et du matériau. Par conséquent, l'absorption de l'énergie laser, dont dépend l'efficacité de l'ablation laser, peut être modifiée en explorant l'influence des paramètres du laser et/ou en effectuant une mise en forme spatiale ou temporelle du faisceau. En effet, des travaux mentionnent l'effet de la durée d'impulsion sur la taille du dépôt d'énergie [21,22], ou le profil d'intensité spatial du faisceau par exemple [23,24]. L'irradiation laser à double impulsion de matériaux diélectriques a également été étudiée. De telles expériences ont été rapportées dans la silice fondue [25–30], le saphir [25,30] et le verre borosilicate [29]. La plupart des articles mentionnent un effet sur les volumes ablatés [25–29] et le seuil de rupture optique (lorsque la densité électronique est atteinte) [29] lié à la deuxième impulsion pour un court délai entre deux impulsions (de **0 à 600 fs**). Selon Hernandez-Ruela *et al* [26] et Gedvilas *et al* [31], la distribution de l'énergie entre les deux impulsions a une influence significative sur le volume d'ablation. Reyne *et al.* ont montré que l'effet de l'irradiation laser à double impulsion sur un cristal biréfringent est dépendant de la polarisation et de la longueur d'onde [32]. L'influence de la polarisation sur le seuil de modification des matériaux diélectriques a

également été rapportée dans le cas d'une irradiation laser à une seule impulsion à une longueur d'onde de **800 nm** avec une durée d'impulsion inférieure à **100 fs** [33–36].

Ainsi, plusieurs travaux ont montré une optimisation possible du dépôt d'énergie dans les verres et pour des impulsions femtosecondes en fonction des besoins des diverses applications. Cependant, un grand nombre de ces travaux ont été réalisés pour des lasers titane saphir, c'est-à-dire à **800 nm** et pour des durées d'impulsion très souvent inférieures à **100 fs**. Ces caractéristiques d'impulsion laser ne répondent pas aux besoins du marché industriel, car ces types de laser sont très onéreux et nécessitent un coût de maintenance élevé. De plus, comme nous le verrons dans le Chapitre 1, les résultats obtenus dans la littérature ne permettent pas en fonction des applications visées de trancher définitivement sur une optimisation des volumes ablatés lors de l'utilisation de deux sous-impulsions pour le perçage laser.

L'enjeu de ces travaux de thèse a été d'explorer différentes voies pour le perçage par percussion dans le but de réduire le temps de perçage laser tout en conservant la qualité d'usinage procuré par une impulsion femtoseconde de caractéristique commerciale et se basant sur les standards des caractéristiques impulsionsnelles délivrées par les laser de la société Amplitude Systèmes, c'est-à-dire à **1030 nm** et **500 fs**. Le temps de perçage laser peut être réduit par deux moyens : (i) une maximisation du volume ablaté pour une densité d'énergie fixée en utilisant une mise en forme temporelle de l'impulsion laser. Ainsi, moins d'impulsions sont nécessaires pour ablater une même épaisseur de matériau, ce qui réduit de ce fait le temps de perçage. (ii) En parallélisant les procédés de perçage par laser, c'est-à-dire en irradiant simultanément plusieurs zones. Une troisième possibilité pourrait être une combinaison des deux. Tous ces travaux ont été réalisés dans la silice fondue. Ce matériau a été choisi, car il a très largement été étudié dans la communauté scientifique, et les mécanismes d'interaction avec le rayonnement femtoseconde est relativement bien décrit dans la littérature. Ce matériau est aussi pertinent vis-à-vis de la problématique industrielle. Ainsi, il sera plus facile de comparer et d'interpréter les résultats obtenus. Aussi, les propriétés physico-chimiques de la silice fondue sont bien connues, ce qui permet de développer des modèles visant à aider à l'interprétation des résultats expérimentaux obtenus.

Deux axes ont été explorés dans le but d'augmenter la vitesse de perçage. Le premier axe de ces travaux de thèse consiste à optimiser le dépôt d'énergie dans le temps par une mise en forme temporelle des impulsions. L'ablation qui résulte de la densité d'énergie absorbée par le matériau est régie comme évoqué précédemment par la dynamique électronique durant l'irradiation laser. Des travaux récents indiquent également que le fait de travailler avec des délais très courts (ps-ns) entre les impulsions successives modifie sensiblement la propagation laser et le dépôt d'énergie dans le matériau [37,38]. Ce phénomène s'explique par le fait que les électrons libérés et chauffés par une impulsion peuvent encore interagir avec l'impulsion suivante, ce qui pourrait améliorer le couplage laser matière et conduire à une meilleure efficacité d'ablation. Nous avons mené des travaux expérimentaux avec deux sous-impulsions en configuration mono longueur d'onde à délai variable dans un premier temps. Dans ces études, le rôle joué par la forme temporelle de l'intensité et l'influence de la polarisation sur l'ablation ont été étudiés. Dans un second temps, nous avons mené des études avec deux sous-impulsions de longueurs d'onde différentes, à délai variable et pour des durées d'impulsions différentes car les mécanismes d'excitation électronique sont notamment dépendants de la longueur d'onde et de la durée d'impulsion. Le délai permet de trouver une configuration optimale sur la coopération de ces différents mécanismes d'excitation. Dans ces études, le rôle joué par la durée d'impulsion et la longueur d'onde ont été étudiés sur les mécanismes impliqués dans la dynamique

électronique et l'ablation laser. Les résultats ont également été supportés par des modèles développés pour décrire la dynamique électronique et la densité d'énergie laser absorbée durant l'irradiation dans chacune des configurations. Le deuxième axe de recherche étudié pour réduire le temps de perçage est la parallélisation du procédé de perçage laser en perçant simultanément à différents endroits. Cependant, le perçage laser induit dans le verre une charge thermique significative dont la relaxation peut conduire à l'apparition de contraintes mécaniques résiduelles, voire à la rupture du verre par fissuration, phénomène à éviter. L'enjeu de ce second axe de recherche a donc été de vérifier expérimentalement, au moyen d'un modulateur de phase et avec le développement d'un code thermo-élastique, que l'irradiation simultanée n'induit pas par effet de coopération l'apparition de contraintes pouvant conduire à la fissuration dans le procédé de perçage parallélisé.

Ce manuscrit contient quatre chapitres. Le premier chapitre donne une vue d'ensemble des mécanismes d'interaction entre un rayonnement laser femtoseconde ainsi que les paramètres laser influençant l'interaction laser-matière. La première partie est consacrée à la description d'un matériau diélectrique, puis aux différents mécanismes d'ionisation, de collisions et de recombinaison intervenant dans la dynamique électronique. Différents modèles sont présentés pour rendre compte de ces différents mécanismes (modèle de Keldysh, Rethfeld, modèle des taux). La réponse du matériau à l'ionisation et aux champs électromagnétiques permet de calculer le dépôt d'énergie laser. La deuxième partie est consacrée à la relaxation du matériau suite à l'irradiation laser. Le transfert de chaleur, le comportement hydrodynamique et le comportement mécanique d'un milieu diélectrique y sont décrits. Dans la troisième partie est rapporté un état de l'art de l'influence des paramètres laser (durée d'impulsion, fluence, longueur d'onde) sur les débits d'ablation. Puis, un second état de l'art est réalisé sur l'influence de la mise en forme temporelle et l'utilisation de deux sous-impulsions de longueur d'onde et/ou de durées d'impulsion différentes sur l'ablation laser.

Le deuxième chapitre est consacré à la présentation des travaux originaux de cette thèse sur l'étude de la silice fondue avec deux sous-impulsions de même longueur d'onde et à délai variable. Dans un premier temps, est présenté le montage et protocole mis en place pour réaliser ces expériences. Ensuite, est présenté un modèle développé pour rendre compte de la dynamique électronique durant l'irradiation à deux sous-impulsions permettant de calculer l'énergie laser absorbée. Les résultats expérimentaux sont ensuite présentés pour deux observables : la transmission optique et le volume ablaté. Les résultats sont ensuite discutés sur la base des résultats expérimentaux et du calcul du dépôt d'énergie évalué par le modèle développé. Dans le cas de ces expériences, le délai a une influence majeure sur les volumes ablatés. Le délai nul est l'optimum pour maximiser les volumes ablatés dans ces expériences. L'influence de la polarisation du champ électrique laser influe sur la photoionisation, l'énergie déposée et le volume ablaté.

Le troisième chapitre est consacré à la présentation des travaux sur l'étude de l'ablation de la silice fondue avec deux sous-impulsions bi-chromatiques à délai variable et de durées d'impulsion différentes. L'influence de la longueur d'onde et de la durée d'impulsion y sont étudiées. Dans un premier temps, un nouveau montage et protocole expérimental sont présentés pour la réalisation de ces expériences. Puis, comme dans le cas mono-chromatique (Chapitre 2), les résultats sont présentés en terme de transmission et de volume ablaté. Ces résultats sont ensuite discutés sur la base des résultats expérimentaux et de modélisations obtenues. Dans cette configuration étudiée, un délai de 1 ps permet d'optimiser le volume ablaté avec les deux sous-impulsions.

Le chapitre 4 est consacré au deuxième axe de recherche qui vise à paralléliser dans l'espace le procédé de multiperforation laser pour réduire les temps de perçage. Dans un premier temps sont présentés le montage et le protocole mis en place pour réaliser ces expériences. Les résultats obtenus sont présentés sur la base d'images prises en microscopie standard et à polarisation croisée. Ensuite, est présenté un modèle thermo-élastique développé pour rendre compte du comportement thermomécanique du matériau et prédire la formation des contraintes. Le modèle vise à évaluer les tendances générales observées expérimentalement et permet de prédire des effets de coopération entre les différents sous-faisceaux.

L'ensemble des résultats obtenus est résumé à la fin de ce document dans la conclusion. Des perspectives faisant suite à ces travaux de thèse sont discutées. Différentes annexes ont été réalisées afin d'appuyer et de préciser différents points évoqués tout au long du document.



# CHAPITRE 1. ÉTAT DE L'ART

---

## Sommaire

---

<b>1. Matériau diélectrique et mécanismes d'interaction sous flux laser sub-picoseconde</b> .....	<b>11</b>
1.1. Le matériau diélectrique .....	11
1.2. Dynamique électronique.....	14
1.2.1. La photoionisation.....	15
1.2.2. Chauffage, ionisation par impact et avalanche électronique.....	19
1.2.3. Relaxation électronique .....	22
1.2.4. Évolution de la densité électronique en bande de conduction.....	23
1.3. Polarisabilité du matériau et fonction diélectrique.....	24
1.3.1. Polarisabilité du matériau. ....	24
1.3.2. Fonction diélectrique, modèle de Drude et propriétés optiques.....	29
1.4. Calcul du dépôt d'énergie .....	32
<b>2. Réponse macroscopique de la matière après irradiation laser</b> .....	<b>34</b>
2.1. Diffusion de la chaleur .....	34
2.2. Réponse thermomécanique du matériau.....	36
2.3. Critère de rupture.....	39
<b>3. Ablation laser et paramètres d'influences</b> .....	<b>43</b>
3.1. Mécanisme d'ablation .....	43
3.2. Influence des paramètres laser sur l'ablation.....	44
3.3. Mise en forme temporelle.....	49
<b>4. Synthèse</b> .....	<b>58</b>

---

Dans ce chapitre est présentée la phénoménologie de l'interaction entre une impulsion courte de type sub-picoseconde et un matériau diélectrique. Tout le long de ce chapitre sont décrits divers modèles, les hypothèses et les simplifications permettant de rendre compte de l'interaction entre l'impulsion laser et la matière. Un état de l'art sur l'influence des paramètres laser sur l'ablation des diélectriques est réalisé ainsi que la présentation de différentes techniques sur la mise en forme temporelle des impulsions laser dans le but d'optimiser l'énergie laser déposée.

Les phénomènes physiques induits par l'interaction sont multiples et se répartissent sur une échelle temporelle allant de la femtoseconde ( $10^{-15}$  seconde) à la milliseconde ( $10^{-3}$  seconde). La Figure 2 illustre l'échelle de temps des phénomènes physiques intervenant pendant et après

l'irradiation d'un matériau diélectrique par une impulsion laser femtoseconde. Une chronologie de ces différents phénomènes physiques ainsi que leur ordre d'apparition est établi. Cependant, les différents phénomènes physiques qui subviennent pendant et après l'irradiation sont fortement conditionnés par les propriétés de l'impulsion laser en termes de durée d'impulsion, longueur d'onde, densité d'énergie. Tous les phénomènes physiques énumérés ne peuvent donc être associés à toutes les impulsions laser.

L'absorption des photons commence dès les premières femtosecondes après le début de l'impulsion et se poursuit pendant toute l'irradiation laser si les conditions le permettent. Les mécanismes d'absorption impliqués sont la photoionisation (incluant l'ionisation par absorption simultanée de plusieurs photons et l'ionisation par effet tunnel) ainsi que l'ionisation par impact. Vient ensuite un processus de thermalisation avec une relaxation des porteurs libres par différents processus collisionnels (électron-phonon, électron-ion, électron-électron) pour des temps répartis sur quelques dizaines à quelques centaines de femtosecondes. Sur des temps un peu plus importants, de quelques picosecondes ( $10^{-12}$  seconde) à quelques dizaines de picosecondes s'ensuit un transfert significatif de l'énergie laser absorbée par les électrons vers les phonons au travers de collisions électron-phonon. Sous l'élévation brutale de la température du réseau, un déplacement potentiel de la matière (mouvement hydrodynamique) peut avoir lieu et initier des ondes de choc ou ondes acoustiques. L'élévation de la température donne lieu à des processus hydrodynamiques sur des échelles de l'ordre de la centaine de picosecondes avec des changements de phase possible (vaporisation du matériau), ainsi que des processus thermomécaniques associés à des déformations de la matrice. Les temps caractéristiques de ces phénomènes vont de la centaine de picosecondes jusqu'à plusieurs microsecondes ( $10^{-6}$  seconde). Dans le même temps, la chaleur diffuse dans le matériau, jusqu'à la dissipation. Les caractéristiques de l'impulsion laser et les propriétés du matériau conditionnent directement le dépôt d'énergie. Suivant la densité d'énergie laser absorbée par le matériau, des modifications d'indices, de l'ablation, des zones affectées thermiquement, des fissures ou même des ruptures peuvent apparaître.

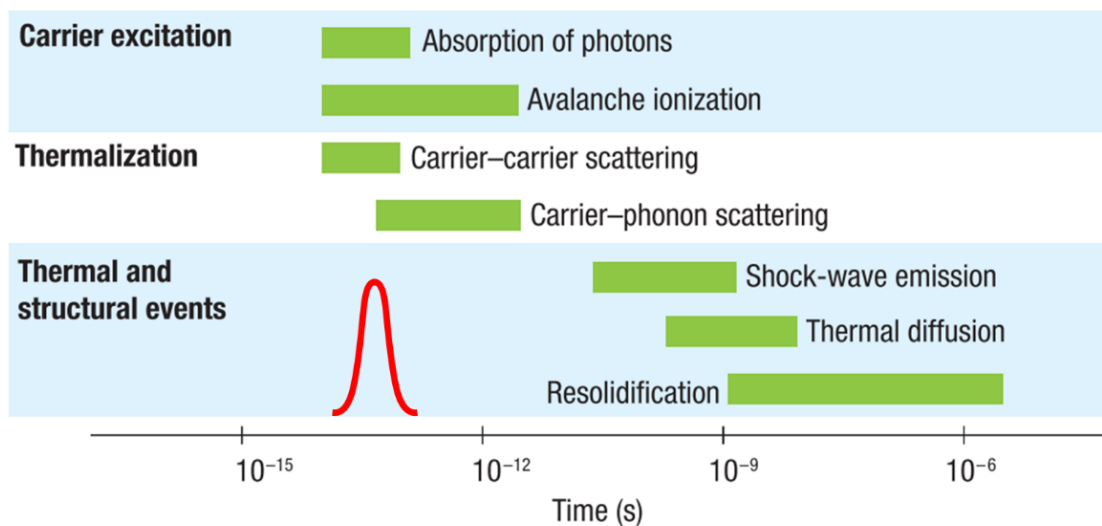


Figure 2. Échelle de temps des phénomènes physiques intervenant pendant et après l'irradiation d'une impulsion laser femtoseconde avec un matériau diélectrique [20]. Les échelles de temps peuvent se décomposer en trois grands événements : la dynamique

électronique avec la propagation du faisceau laser, la thermalisation et les effets thermomécaniques.

Le chapitre est divisé en trois sections. La Section 1 décrit brièvement la nature des matériaux irradiés avec les différents mécanismes impliqués dans la dynamique électronique (ionisation, chauffage, recombinaison électronique). L'évolution des propriétés optiques du matériau intervenant durant l'irradiation laser dans les diélectriques y est également décrite. La Section 2 est consacrée aux processus thermomécaniques mis en jeu après irradiation laser. Puis, la Section 3 est dédiée à l'influence des paramètres laser et de la mise en forme temporelle de l'impulsion laser sur le seuil d'ablation et l'ablation des diélectriques.

## 1. Matériau diélectrique et mécanismes d'interaction sous flux laser sub-picoseconde

Cette section est dédiée à la description des phénomènes physiques impliqués pendant l'irradiation laser. En premier, une description du matériau diélectrique est réalisée. Puis, les différents mécanismes d'interaction donnant lieu à l'absorption des photons et à la génération des porteurs libres sont abordés. L'ionisation couplée aux mécanismes collisionnels donne lieu à la dynamique électronique au sein d'un diélectrique. La réponse du matériau au champ électromagnétique laser est également détaillée ainsi que l'évolution de ses propriétés optiques. Différents modèles sont présentés pour rendre compte des divers mécanismes précédemment explicités. La modélisation de ces phénomènes permet de comprendre le rôle joué par les divers mécanismes physiques impliqués dans le dépôt d'énergie laser menant à l'ablation du matériau.

### 1.1. Le matériau diélectrique

La matière qui nous entoure est constituée d'atomes eux-mêmes formés de noyaux (protons, neutrons) entourés d'un nuage électronique. La Figure 3 représente les niveaux d'énergies électroniques pour un atome isolé et un ensemble d'atomes. Pour un atome unique et isolé de son environnement, les niveaux d'énergie sont discrets et quantifiés. Les électrons peuvent occuper des orbitales atomiques où l'énergie électronique est définie par la mécanique quantique, ces niveaux d'énergie sont donnés par les valeurs propres de l'équation de Schrödinger. Les niveaux d'énergie atomiques sont occupés progressivement en partant des niveaux les plus profonds vers les niveaux périphériques occupés par les électrons (Figure 3). Dans un solide, la proximité des atomes influe sur les niveaux énergies atomiques et l'interaction entre les électrons conduit à la dégénérescence des niveaux d'énergie. Avec  $N$  atomes, les niveaux se démultiplient en un continuum d'états possibles autour des niveaux d'énergie initiaux (Figure 3) donnant lieu à une structure de bande [39]. La structure de bande dépend de la nature du solide et de la périodicité [39]. Il est possible de distinguer les électrons de très fortes énergies, proches du noyau, appelés électrons de cœur dans la Figure 3 et les électrons d'énergies plus importantes des niveaux périphériques, appelés les électrons périphériques. Les électrons périphériques sont les plus labiles et peuvent être dans deux bandes d'énergies appelées la bande de conduction et la bande de valence. La position respective de ces deux bandes permet de classer les matériaux en trois grandes catégories : les conducteurs, les semi-conducteurs et les isolants.



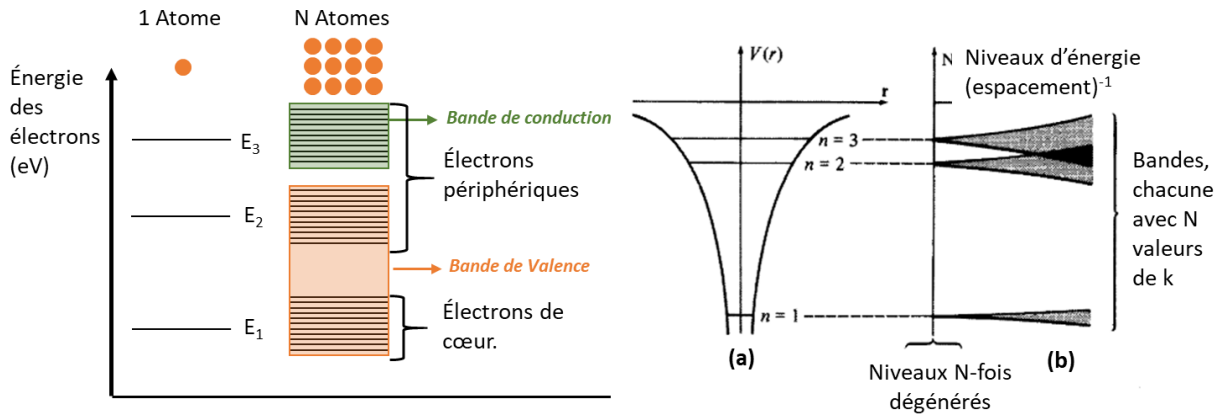


Figure 3. Schéma représentant les niveaux d'énergie pour un atome isolé, trois atomes et un ensemble d'atomes à gauche. À droite en (a) est une représentation schématique des niveaux électroniques non dégénérés dans un potentiel atomique. En (b) sont représentés les niveaux d'énergie pour ces N atomes dans un réseau périodique, tracés en fonction de l'inverse de la distance interatomique moyenne. Quand les atomes sont loin les uns des autres (intégrales de recouvrement faibles), les niveaux sont presque dégénérés, mais quand les atomes sont plus proches (intégrales de recouvrement importantes), les niveaux s'élargissent en bandes [39].

La Figure 4 représente la position de ces deux bandes pour les trois catégories de matériaux. Le niveau de Fermi représente le niveau d'énergie maximal qu'un électron peut atteindre à la température nulle (0 K). Les conducteurs ont un nombre d'électrons qui ne permet pas de remplir une couche électronique dans sa totalité et le dernier niveau d'énergie se retrouve partiellement rempli. Les électrons dans un tel cas sont faiblement liés à l'atome, ils sont dits libres. Pour un conducteur, le niveau de Fermi se trouve dans la zone de chevauchement entre la bande de valence et la bande de conduction (Figure 4). C'est le cas par exemple du cuivre, qui est un très bon conducteur. L'atome de cuivre possède 29 électrons, les 28 premiers électrons remplissent les couches K, L, M avec respectivement 2, 8, 18 électrons dans chacune des couches, le 29<sup>ème</sup> électron est donc seul dans la couche O, il est libre et dans la bande de conduction. Dans la suite nous verrons que les électrons libres présents dans la bande de conduction jouent un rôle essentiel dans les mécanismes d'interaction laser-matière. Pour les isolants, la bande de valence est totalement remplie et la bande de conduction est vide (Figure 4). La bande de valence et la bande de conduction sont alors séparées par une bande interdite (*appelée band gap en anglais*). L'énergie de la bande interdite est généralement comprise entre 3 et 12 eV selon la nature du matériau. Le niveau de Fermi est dans la bande interdite. Pour apporter des électrons en bande de conduction, il faut apporter de l'énergie sous forme de chaleur ou les éclairer avec des photons très énergétiques (ultraviolet ou rayon X). Néanmoins, la génération d'électrons de conduction par des photons moins énergétiques (du visible ou de l'infrarouge) est possible et sera abordée ci-après. La silice amorphe de formule  $\text{SiO}_2$ , qui est le matériau d'étude dans le cadre de ces travaux, est constituée d'un atome de Silicium Si et de deux atomes d'Oxygène O. Ces trois atomes se partagent sur leur couche externe des paires d'électrons pour former des doublets liants appelés liaison covalente. La silice est un isolant appelé diélectrique. Pour finir, il y a les semi-conducteurs où tout comme les isolants, les électrons remplissent en totalité la bande de valence, il n'y a pas d'électron dans la bande de conduction et ils possèdent une bande interdite. La différence entre semi-conducteur et isolant réside dans la valeur de la bande interdite qui est environ 1 eV.

L'apport d'énergie sous forme thermique ou sous rayonnement visible est suffisant pour qu'un électron de la bande de valence franchisse la bande interdite et se retrouve dans la bande de conduction. À noter que l'ajout d'impuretés dans un semi-conducteur ou un isolant permet de faire apparaître des niveaux d'énergie là où il n'y en avait pas, notamment dans la bande interdite. Ces trois grandes familles de matériaux sont à la base de l'électronique, les conducteurs sont utilisés dans le transport des courants électriques, les diélectriques pour isoler, et les semi-conducteurs constituent la base de la plupart de nos capteurs, de l'électronique, des diodes laser, etc.

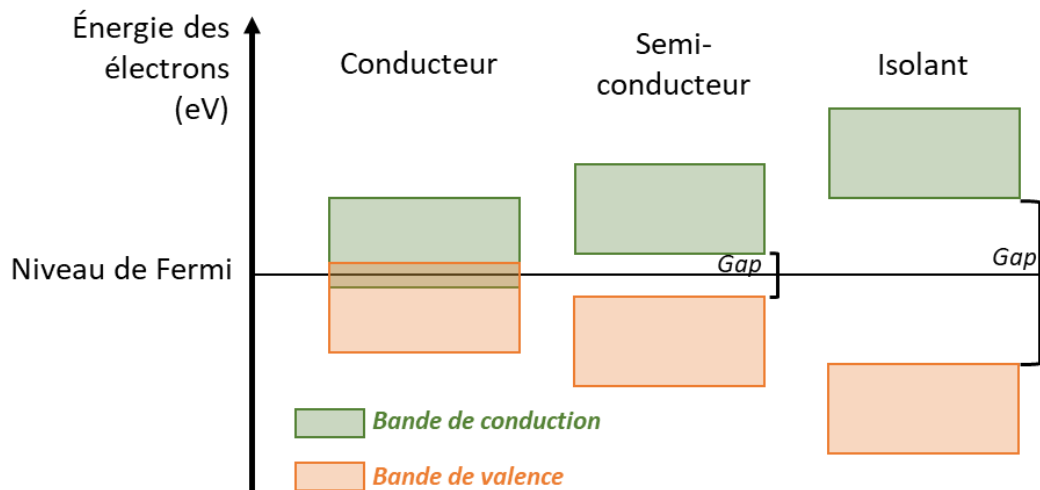


Figure 4. Schéma représentant la position des bandes de valence et de conduction pour trois grandes catégories de matériaux. Les conducteurs, les semi-conducteurs et les isolants.

Le Tableau 1 montre la valeur de la bande interdite pour quelques diélectriques très utilisés dans les procédés d'usinage comme la découpe laser, l'ablation, la modification intra volume, etc. En effet, tout comme les semi-conducteurs où la valeur de la bande interdite peut être modulée volontairement en y insérant des impuretés (d'autres atomes), la pureté du réseau pour un diélectrique influe sur la valeur de la bande interdite. Ainsi, suivant la nature et la concentration d'atomes « étrangers » au matériau d'intérêt, la valeur de la bande interdite peut être légèrement réduite, ou un niveau d'énergie peut apparaître et être accessible dans la bande interdite. C'est la raison pour laquelle, les valeurs données dans la littérature peuvent légèrement différer de quelques eV.

Tableau 1. Valeur de la bande interdite en (eV) pour différents diélectriques utilisés en usinage laser.

	Silice fondue [40,41] (SiO <sub>2</sub> )	Borosilicate [29,40] (SiO <sub>2</sub> + B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> + autres)	Verre Saphir [42,43] (Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	Fluorure de Calcium [44] (CaF <sub>2</sub> )
Bande interdite (eV)	7,5 – 9	4 – 4,4	8,8 – 9,9	12

Les matériaux diélectriques tels que les verres sont principalement constitués d'une base formatrice du réseau, SiO<sub>2</sub> (silice, quartz) ou Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (saphir, alumine) par exemple, à laquelle s'ajoute des modificateurs de réseaux (alcalins, alcalino-terreux, éléments de transition ou terres rares). Le

verre peut être considéré comme un solide non cristallin, présentant le phénomène de transition vitreuse [45,46]. En effet, les verres ont la faculté de passer progressivement et de manière réversible à un état de plus en plus fluide avec l'élévation de la température, car leur viscosité diminue. Au cours de cette évolution, une modification rapide des propriétés au voisinage d'une température, appelée la transition vitreuse, se produit. Les verres n'ont donc pas de point de fusion fixe, contrairement aux cristaux. Leurs caractéristiques mécaniques se modifient progressivement et passent sans discontinuité d'un solide élastique à un liquide visqueux. D'un point de vue thermodynamique, le verre est obtenu à partir d'une phase liquide surfondue solidifiée au point de transition vitreuse, dit  $T_g$ . Par convention la température de transition vitreuse  $T_g$  est obtenue lorsque la viscosité vaut  $10^{13}$  Pa.s ou Poise. Pour une température inférieure à  $T_g$ , le matériau est solide avec le désordre structural d'un liquide : c'est un verre. De plus, la température de ramollissement  $T_r$  (*softening point en anglais*) est la température à laquelle le verre se déforme sous son propre poids. À cette température, la viscosité du verre est de  $10^{7,65}$  Pa.s (Poise) et  $T_r < T_g$ . La température de transition vitreuse ( $T_g$ ) concerne la partie amorphe d'un matériau tandis que la température de fusion ( $T_f$ ) concerne la partie cristalline. La partie cristalline étant plus stable, en général  $T_g < T_f$ . Pour la silice, la température de transition vitreuse est de  $T_g = 1473$  K [47] et la température de fusion est de  $T_f = 1996$  K [47].

## 1.2. Dynamique électronique

La densité des porteurs libres en bande de conduction est une donnée importante et essentielle, elle permet de suivre l'évolution de la fonction diélectrique du matériau qui définit les propriétés optiques du matériau au cours du temps. Connaître l'évolution des propriétés optiques ainsi que l'évolution de la densité électronique au cours de l'irradiation laser permet de calculer l'énergie laser absorbée par le matériau dans la section suivante.

Cette sous-section est consacrée à la description théorique de différents modèles développés pour rendre compte de la variation de densité électronique en bande de conduction durant l'irradiation par une impulsion laser femtoseconde. Les quatre principaux processus y sont décrits pour décrire la dynamique des électrons dans les matériaux diélectriques. Premièrement, les électrons de valence sont promus dans la bande de conduction par (i) la photoionisation, c'est-à-dire par absorption multiphotonique et/ou par effet tunnel en fonction des paramètres du laser. Les électrons de conduction ainsi produits absorbent linéairement les photons de l'impulsion laser ; ce phénomène est appelé (ii) le chauffage des électrons, ils acquièrent de l'énergie cinétique. Lorsque l'énergie cinétique des électrons est de l'ordre de grandeur de la bande interdite, ils peuvent faire une collision avec des électrons de valence, ce qui entraîne ce que l'on appelle (iii) l'ionisation par impact. Dans le même temps, les électrons libres (iv) se recombinent, un processus par lequel les électrons reviennent à leur état initial, ou dans un autre état, pouvant donner lieu à des excitons autopiégés. De plus, les collisions électroniques sont des processus qui doivent être pris en compte au cours du temps, ils interviennent lors du processus (ii) le chauffage électronique mais aussi lors de la thermalisation de la température électronique et ionique.

### 1.2.1. La photoionisation

La photoionisation est un processus d'ionisation non linéaire regroupant deux mécanismes : (i) l'ionisation multiphotonique et (ii) l'ionisation par effet tunnel. La photoionisation est un mécanisme qui dépend principalement de l'intensité laser, de la longueur d'onde et de la nature du matériau (valeur de la bande interdite).

#### i. Ionisation multiphotonique

L'intensité est une grandeur déterminante dans l'absorption multiphotonique, elle renseigne sur la quantité de photons se propageant par unité de temps et d'espace. Plus l'intensité sera grande plus le nombre de photons arrivant à un temps et en un point de l'espace donné sera importante. L'énergie d'un photon est calculée suivant la relation  $E_p = \hbar\omega$ ,  $\hbar$  étant la constante de Planck et  $\omega$  la pulsation optique du laser. Pour un laser de longueur d'onde **1030 nm**, l'énergie d'un photon est de **1,2 eV**. Le processus d'absorption linéaire n'est donc pas possible dans la silice possédant une bande interdite d'environ **9 eV** (voir section 1.1). L'absorption simultanée de plusieurs photons devient significative pour des intensités de  $10^{12}$  à  $10^{13}$   $\text{W}/\text{cm}^2$  [48] induisant un régime d'absorption non linéaire. Ce phénomène d'absorption non-linéaire apparaît préférentiellement au point focal d'un faisceau laser et il permet à un matériau transparent d'être localement absorbant. Pour la silice, il faudra cumuler l'absorption simultanée d'au moins **8 photons** à la longueur d'onde **1030 nm** pour que l'électron traverse la bande interdite (**9 eV** environ). Le mécanisme d'absorption multiphotonique est illustré en Figure 5. Plus généralement, la probabilité d'absorption de  $N$  photons pour traverser la bande interdite est proportionnelle à  $I^N$ ,  $I$  étant l'intensité laser. Le taux d'absorption multiphotonique est calculé par la relation donnée dans l'Eq. (1).

$$W_{IMP}(I) = \sigma_n I^N \quad (1)$$

Où  $\sigma_n$  est la section efficace généralisée d'absorption pour  $N$  photons [49].

#### ii. L'ionisation par effet tunnel

L'ionisation par effet tunnel est illustrée sur la Figure 5. Lorsque le champ électrique devient suffisamment intense, celui-ci induit une distorsion des bandes, qui abaisse de manière transitoire la barrière de potentiel ionique (la bande de conduction). Ainsi, la valeur de la bande interdite s'en retrouve affectée et elle diminue, si bien que la probabilité pour qu'un électron de la bande de valence franchisse la barrière de potentiel par effet tunnel vers la bande de conduction n'est plus négligeable. L'abaissement de la barrière de potentiel est un phénomène intermittent qui culmine au maximum d'amplitude du champ électrique. Celui-ci étant périodique, l'abaissement de la barrière de potentiel est au plus fort deux fois par cycle optique en polarisation linéaire [50–52]. L'ionisation par effet tunnel est d'autant plus efficace que le champ électrique est élevé, c'est-à-dire que l'intensité est grande.

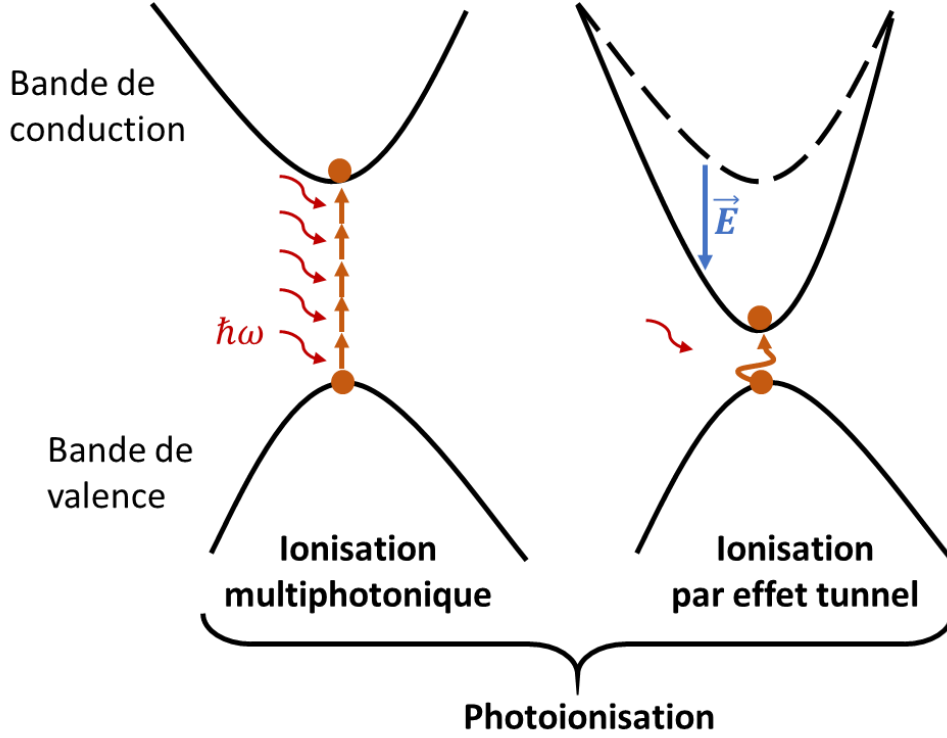


Figure 5. Illustration du processus de photoionisation. La photoionisation comprend à la fois l'ionisation multiphotonique et l'ionisation par effet tunnel. L'ionisation multiphotonique (à gauche) correspond à l'absorption simultanée de plusieurs photons permettant à un électron de la bande de valence de franchir la bande interdite et d'être promu en bande de conduction. L'ionisation par effet tunnel (à droite) abaisse l'énergie de la bande de conduction lorsque le champ électrique est suffisamment intense, ce qui permet à un électron de franchir la bande interdite.

L. V. Keldysh a étudié ces deux mécanismes d'ionisation (i) l'ionisation multiphotonique et (ii) l'ionisation par effet tunnel et en 1965, il unifie ces deux processus dans une seule et même théorie appelée le modèle de Keldysh. Ce modèle permet de calculer le taux d'ionisation (densité d'électrons libres produite par unité de temps) sous un flux laser de champ électrique d'amplitude  $E$ , de pulsation optique  $\omega$  et pour une valeur de bande interdite  $E_{BG}$ . Ce taux de photoionisation est donné par la relation suivante [17] :

$$W_{PI}(I) = \frac{2\omega}{9\pi} \left( \frac{m_e^* \omega}{\hbar \Gamma_2} \right)^{\frac{3}{2}} \cdot Q \left( \gamma, \frac{E_{BG}^*}{\hbar \omega} \right) \cdot \exp \left( -\pi \left( \frac{E_{BG}^*}{\hbar \omega} + 1 \right) \frac{\mathcal{K}_1(\Gamma_2) - \mathcal{K}_2(\Gamma_2)}{\mathcal{K}_2(\Gamma_1)} \right) \quad (2)$$

Où

$$Q \left( \gamma, \frac{E_{BG}^*}{\hbar \omega} \right) = \sqrt{\frac{\pi}{2\mathcal{K}_1(\Gamma_1)}} \sum_{n_{ph}=0}^{\infty} \exp \left( -\pi \left( n_{ph} - \frac{E_{BG}^*}{\hbar \omega} + 1 \right) \frac{\mathcal{K}_1(\Gamma_2) - \mathcal{K}_2(\Gamma_2)}{\mathcal{K}_2(\Gamma_1)} \right) \Phi \left( \sqrt{\pi^2 \frac{n_{ph} - \frac{E_{BG}^*}{\hbar \omega}}{2\mathcal{K}_1(\Gamma_1) \mathcal{K}_2(\Gamma_2)}} \right)$$

$\Gamma_1 = \frac{1}{\sqrt{1+\gamma^2}}$ ,  $\Gamma_2 = \frac{\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}}$  et  $\gamma$  est le paramètre de Keldysh aussi appelé paramètre d'adiabaticité donné par l'Eq. (3).  $m_e^*$  est la masse effective de l'électron,  $e$  la charge de l'électron et  $E$  l'amplitude du champ électrique,  $n_{ph}$  est l'ordre multiphotonique et  $E_{BG}^* = \frac{2E_{BG}}{\pi\Gamma_2} \mathcal{K}_2(\Gamma_1)$  est le potentiel effectif d'ionisation. Les symboles  $\langle \rangle$  représentent la partie entière. Les fonctions  $\mathcal{K}_1$  et  $\mathcal{K}_2$  sont respectivement les intégrales elliptiques complètes de la première et seconde espèce [53],  $\Phi$  est la fonction de Dawson. Le paramètre d'adiabaticité de Keldysh  $\gamma$  [17] permet d'évaluer rapidement le régime d'interaction dans lequel on se trouve : si  $\gamma \ll 1$ , alors la photoionisation est dominée par l'ionisation par effet tunnel, si  $\gamma \gg 1$  alors la photoionisation est dominée par l'ionisation multiphotonique. Si  $\gamma \cong 1$  alors les 2 mécanismes contribuent de façon équivalente.

$$\gamma = \frac{\omega \sqrt{m_e^* E_{BG}}}{eE} \quad (3)$$

Il existe d'autres modèles pour évaluer le taux de photoionisation. N. S. Shechblanov *et al.* [54] propose une correction du modèle de Keldysh en y incorporant les règles de sélections, les différences de calcul sur le taux de photoionisation peuvent atteindre un ordre de grandeur dans le cadre des simulations réalisées.

La Figure 6 représente l'évolution du taux de photoionisation dans la silice fondue calculé avec l'Eq. (2) en fonction de l'intensité laser pour trois longueurs d'onde **1030**, **515** et **343 nm** couramment utilisées en usinage laser pour des laser Nd-YAG (à noter que la longueur d'onde de **800 nm** issue des laser titane-saphir est également très utilisée). Le taux de photoionisation augmente très fortement avec l'augmentation de l'intensité laser. Les rebonds observés sont causés par une augmentation de l'ordre multiphotonique (nombre de photons absorbés simultanément), car la bande interdite effective augmente avec l'augmentation de l'intensité. La photoionisation est toujours plus importante pour les courtes longueurs d'onde. En effet, la probabilité d'absorption simultanée augmente au fur et à mesure que l'énergie des photons augmente, car l'ordre multiphotonique décroît. C'est pourquoi le calcul du paramètre de Keldysh montre qu'à intensité égale, le processus d'ionisation multiphotonique est plus efficace pour les courtes longueurs d'onde. Le taux de photoionisation pour des intensités inférieures à  $10^{12}$ ,  $5 \times 10^{12}$  et  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> respectivement pour les longueurs d'onde de **1030**, **515** et **343 nm** sont proportionnels à  $I^N$  donné par l'Eq. (1). Pour des intensités de  $10^{12}$  à  $10^{13}$ -  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> suivant la longueur d'onde, l'ionisation par effet multiphotonique et tunnel coexistent. Ces niveaux d'intensité sont en général ceux utilisés pour l'ablation des diélectriques. Pour une impulsion de **500 fs** et d'intensité crête  $5 \times 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> à **1030**, **515** et **343 nm**, le taux de photoionisation sera respectivement d'environ  $10^{15}$ ,  $10^{18}$  et  $10^{20}$  cm<sup>-3</sup> . ps<sup>-1</sup>. Lorsque l'intensité avoisine  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> la dépendance en longueur d'onde sur le taux de photoionisation est quasi inexistante et il y a une domination de l'ionisation par effet tunnel sur l'ionisation multiphotonique.

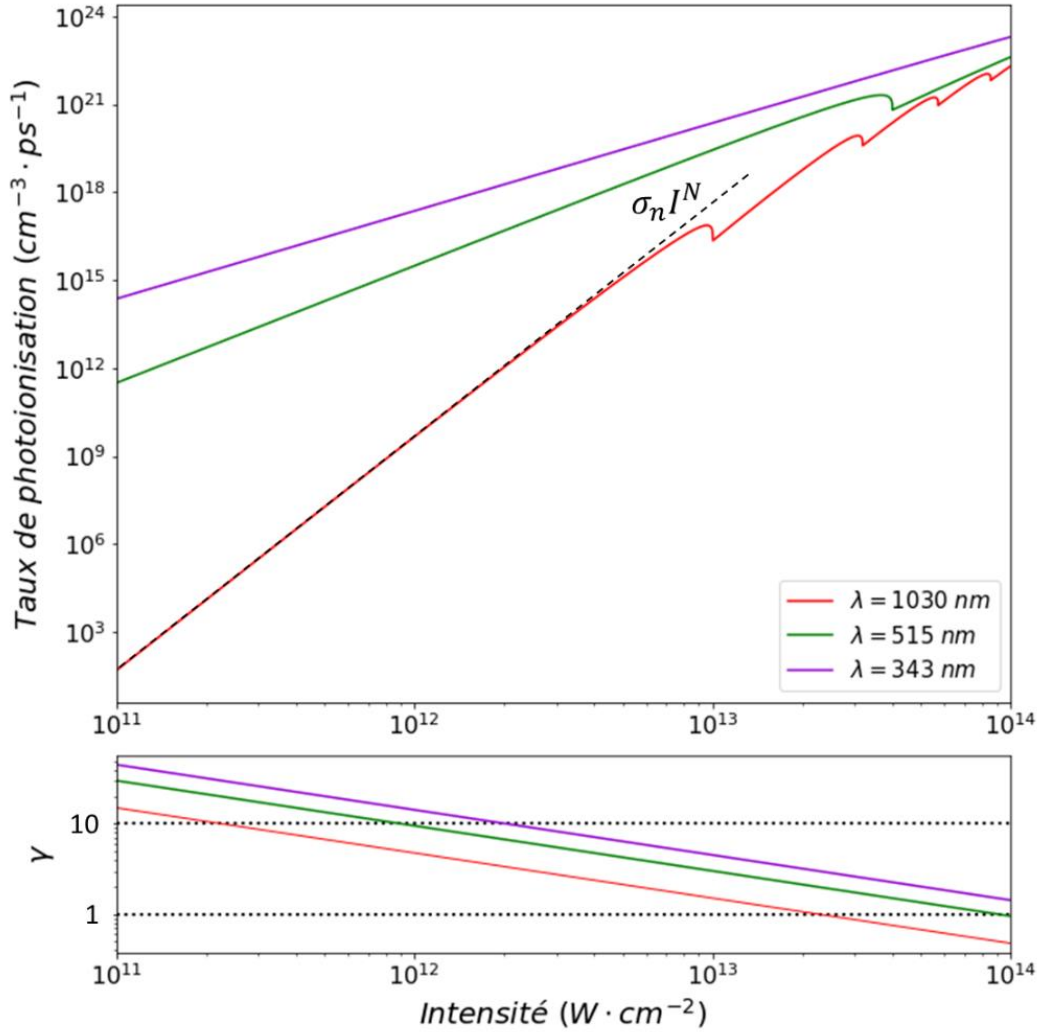


Figure 6. Taux de photoionisation et le paramètre d'adiabacit  dans la silice fondue en fonction de l'intensit  pour les longueurs d'onde de 1030, 515 et 343 nm. Le taux de photoionisation est calcul  avec l'Eq. (2) d'apr s la th orie de Keldysh [17] pour une bande interdite de 9 eV et une masse effective de  $m_e$ .

La Figure 7 repr sente l' volution du taux de photoionisation en fonction de la valeur de la bande interdite, pour des intensit s de  $10^{12}$  et  $10^{13} \text{ W/cm}^2$    la longueur d'onde de 1030 nm. Le taux de photoionisation d cro t non lin airement avec l'augmentation de la bande interdite. Lorsque la bande interdite augmente d'une  nergie  gale   celle du photon, l'ordre multiphotonique augmente et l'absorption d'un photon suppl mentaire est requise pour l'ionisation, c'est la raison pour laquelle le taux de photoionisation chute. La chute du taux de photoionisation associ e   l'augmentation de l'ordre multiphotonique lorsque la bande interdite augmente est moins significative en comparant les courbes  $10^{12}$  et  $10^{13} \text{ W/cm}^2$ , car l'ionisation par effet tunnel est de plus en plus pr sente   forte intensit  et masque cette effet.

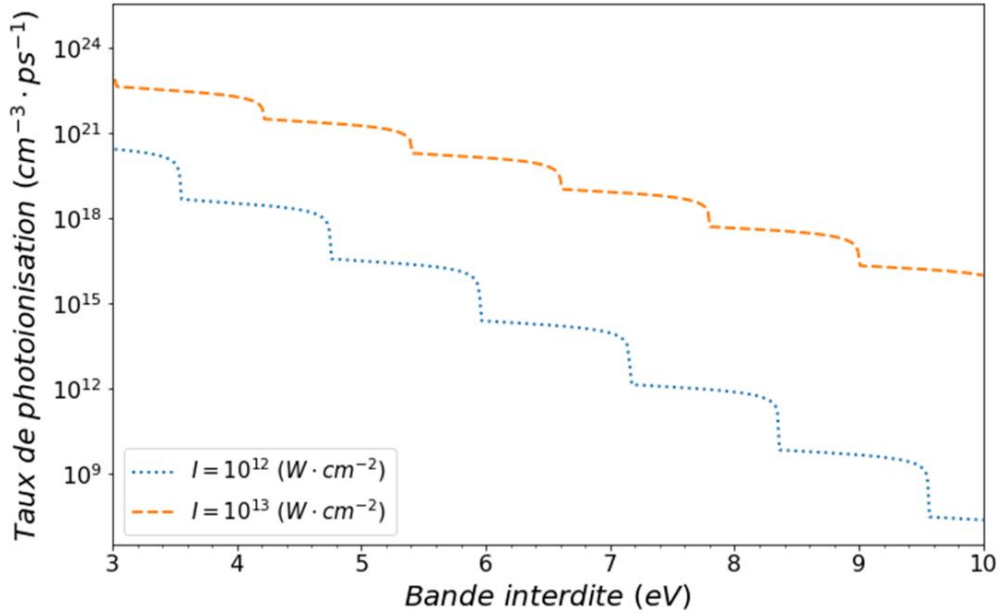


Figure 7. Taux de photoionisation calculé avec l'Eq. (2) en fonction de la valeur de la bande interdite pour une longueur d'onde de 1030 nm d'intensité et  $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> (points bleus) et  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> (traits orange) pour une masse effective de  $m_e$ .

### 1.2.2. Chauffage, ionisation par impact et avalanche électronique

Les électrons ionisés par photoionisation servent de précurseur à l'ionisation par impact. En effet, les électrons libres générés par photoionisation peuvent sous le flux laser absorber linéairement des photons et acquérir de l'énergie cinétique par des mécanismes de collisions électron-phonon-photon [55], et par Bremsstrahlung inverse par collision électron-ion-photon lorsque le degré d'ionisation est suffisamment élevé. [56]. Cette étape est appelée le chauffage électronique, il est illustré en 1 dans la Figure 8. Le Bremsstrahlung inverse est un processus qui intervient dans un second temps dans le chauffage électronique, car un grand nombre d'ions sont nécessaires pour que sa contribution soit significative. Lorsque l'énergie cinétique acquise par l'électron devient supérieure à l'énergie effective de la bande interdite, l'électron peut collisionner un électron en bande de valence et le promouvoir en bande de conduction. L'électron qui engendre la collision perd son énergie cinétique et redescend dans un niveau d'énergie plus faible en bande de conduction. Ce processus est appelé ionisation par impact [57]; il est illustré en 2 dans la Figure 8. Chaque électron en bande de conduction peut être chauffé et potentiellement entrer en collision avec un ou plusieurs électrons de valence et contribuer à l'ionisation par impact. Ce processus répété augmente considérablement la population en bande de conduction. Si le chauffage est suffisant, l'ionisation par impact mène à une augmentation exponentielle du nombre d'électrons en bande de conduction ; ce phénomène est appelé avalanche électronique (illustré en 3 dans la Figure 8). Le taux d'ionisation par impact peut être calculé selon le modèle proposé par Scott *et al.* [49] et Stuart *et al.* [58,59]. Il est donné par l'Eq. (4).

$$W_{ii} = \alpha n_e(t) I(t) \quad (4)$$



Où  $n_e(t)$  est la densité d'électrons libres,  $I(t)$  est l'intensité laser et  $\alpha$  est le coefficient d'ionisation par impact (propre à chaque matériau). Plusieurs modèles permettent d'évaluer le coefficient d'ionisation par impact, le plus simple est basé sur le modèle de Drude. L'évolution de la densité électronique en bande de conduction peut ainsi être décrite comme la somme des différents taux contribuant à l'ionisation : taux d'ionisation multiphotonique ou du taux de photoionisation (s'il y a en plus de l'ionisation par effet tunnel) et du taux d'ionisation par impact.

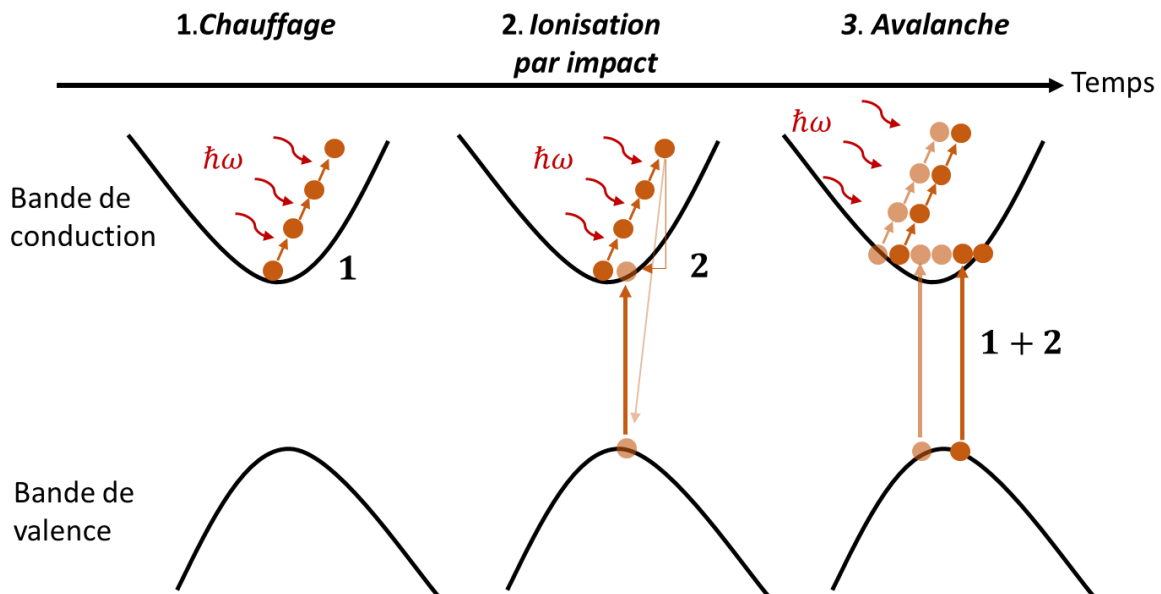


Figure 8. Chauffage, ionisation par impact et avalanche électronique.

Rethfeld propose un autre modèle en utilisant plusieurs équations de taux connues sous le nom de modèle MRE (*Multiple Rate equation en anglais*) [18]. Ce modèle rend compte du chauffage et de l'ionisation par impact conduisant à l'avalanche électronique en discrétisant les niveaux d'énergie en bande de conduction contrairement au modèle proposé par Stuart *et al.* [58,59]. Le modèle MRE proposé par Rethfeld est donné par l'Eq. (5).

$$\dot{n}_e = \sum_{k=0}^{k_{\max}} \dot{\rho}_k$$

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_0 &= \dot{w}_{PI} + 2\tilde{\alpha}\rho_0 - \sigma_1\rho_0 \\ \dot{\rho}_1 &= \sigma_1\rho_0 - \sigma_1\rho_1 \\ &\vdots \\ \dot{\rho}_{k-1} &= \sigma_1\rho_{k-2} - \sigma_1\rho_{k-1} \\ \dot{\rho}_k &= -\tilde{\alpha}\rho_k + \sigma_1\rho_{k-1} \end{aligned} \quad (5)$$

Où l'énergie des électrons en bande de conduction est répartie suivant une distribution à  $k_{\max}$  niveaux. Où  $\rho_k$  est la densité des électrons dans la bande de conduction au niveau de l'énergie  $E_k = k\hbar\omega$  avec  $k$  un nombre entier correspondant à divers états d'énergie dans la bande de

conduction,  $E_0 = 0$  étant le niveau d'énergie le plus bas de la bande de conduction.  $E_{k_{\max}} = k_{\max} \hbar \omega$  est le niveau énergétique maximal.  $\dot{w}_{PI}$  est le taux de photoionisation,  $\tilde{\alpha}$  correspond à la fréquence de collision des électrons de conduction avec les électrons de valence.  $\sigma_1$  est le taux d'absorption d'un photon pour un électron dans la bande de conduction au champ laser  $E$ . Il est à noter que le chauffage électronique est fortement dépendant de la longueur d'onde. En effet, le taux d'absorption à un photon  $\sigma_1$  en bande de conduction varie non linéairement avec la longueur d'onde et suit une loi d'échelle en  $\lambda^2$ - $\lambda^3$  [48,57,58,60].

Le chauffage électronique et l'ionisation par impact sont des mécanismes qui ont besoin de temps pour intervenir comparé à la photoionisation. Ces mécanismes existent uniquement en présence d'une population initiale d'électrons en bande de conduction, c'est une condition nécessaire comparée au processus précédemment décrit intervenant dans la photoionisation. Ils ne peuvent alors intervenir au tout début de l'interaction de l'impulsion laser. Les caractéristiques de l'impulsion laser, en termes d'intensité, de durée d'impulsion et de longueur d'onde, influe de façon importante sur la proportion d'ionisation entre les trois mécanismes d'ionisation que sont l'ionisation multiphotonique, l'ionisation par effet tunnel et l'ionisation par impact. En effet, dans les travaux de Stuart *et al.* [58,59], Kaiser *et al.* [61] puis Rethfeld [48] les études réalisées à 1053, 526 et 500 nm dans la silice montrent que l'avalanche électronique devient le mécanisme d'excitation électronique dominant pour des durées d'impulsions supérieures à 100 fs à forte intensité ( $\sim 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>). La Figure 9 issue d'une publication de Rethfeld [48] montre le pourcentage d'ionisation par impact en fonction de la durée d'impulsion et de l'intensité. Le temps de transition  $t_{MRE}$  est défini comme inversement proportionnel à l'intensité  $I$  appliquée ( $t_{MRE} \approx \frac{10^{13}}{I}$  ps W/cm<sup>2</sup>). Il définit le temps nécessaire à la transition entre le régime de photoionisation et d'ionisation par impact  $t_{MRE} \approx 100$  fs ( $I = 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>) pour la silice avec un gap de 9 eV et une longueur d'onde de 500 nm.

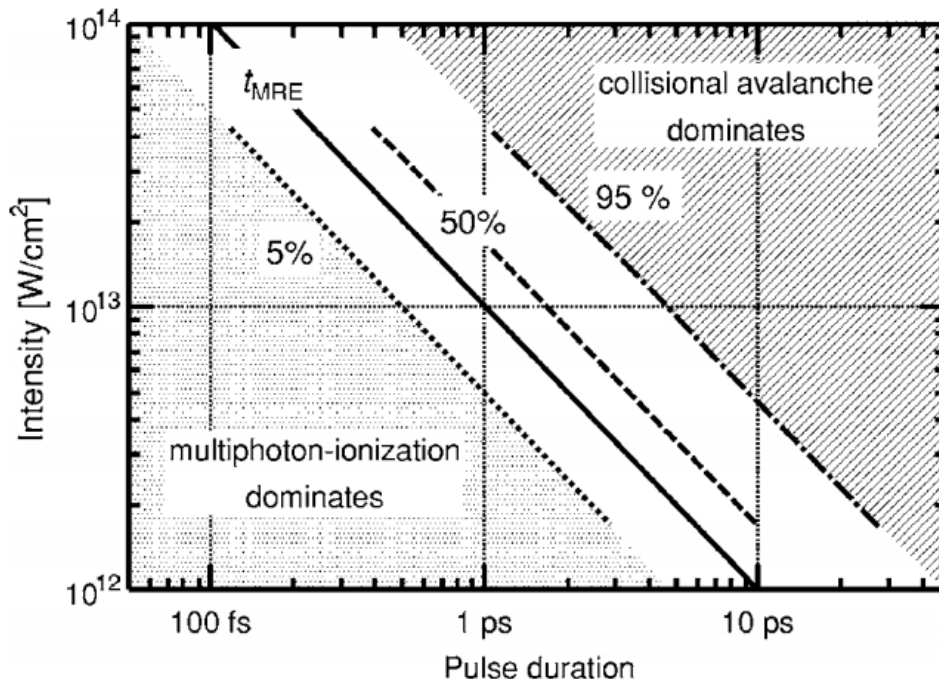


Figure 9. Pourcentage d'ionisation par impact en fonction de la durée d'impulsion et de l'intensité. Le pourcentage d'ionisation par impact est calculé avec le modèle MRE de

l'équation (5). Le temps  $t_{MRE}$  indique la transition entre la domination du régime de photoionisation et celle dominée par le régime d'avalanche [48]. La valeur de la bande interdite utilisée est de **9 eV** et l'énergie des photons est de **2,48 eV**.

Une étude expérimentale pompe sonde menée par Lebugle *et al.* [62] réalisée dans la silice fondue à une longueur d'onde de **1025 nm** pour une durée d'impulsion de **500 fs** et pour des fluences supérieures à environ **4** fois le seuil d'ablation en fluence montre une apparition tardive du phénomène d'avalanche électronique. En effet, ils montrent que le maximum de densité électronique est atteint **0,5 ps** après le pic de l'impulsion pompe.

### 1.2.3. Relaxation électronique

En parallèle des mécanismes d'ionisation qui interviennent sur la durée d'impulsion laser, des mécanismes collisionnels et des recombinaisons apparaissent au cours du temps. En effet, les électrons en bande de conduction peuvent subir des collisions de différentes natures : électron-photon, électron-ion, électron-électron ou électron-neutre [63]. La fréquence de collision peut s'écrire comme la somme de chacune des contributions  $\nu_{ce} = \nu_{e-ph} + \nu_{e-i} + \nu_{e-e} + \nu_{e-n}$ . La fréquence de collision est dépendante de la température électronique et de la densité de porteurs libres, certains mécanismes collisionnels vont donc prédominer en fonction de la température électronique et de la densité électronique. À basse température électronique (inférieure à la température de Fermi i.e quelques eV), les collisions sont principalement dues aux collisions électron-phonon. Pour des températures supérieures à la température de Fermi et une forte ionisation, les collisions électron-électron et électron-ion dominant. Les deux principaux mécanismes collisionnels sont décrits brièvement ci-après.

Collision électron-phonon : sa fréquence est de l'ordre de  $10^{14}$ - $10^{15} \text{ s}^{-1}$  [57,64,65] pour des électrons d'énergies entre **0** et **30 eV**, lorsque la matrice est à l'état solide. Elle intervient notamment dans le processus du chauffage électronique durant l'irradiation laser en faisant intervenir comme troisième corps le photon. Dans le cas du chauffage électronique, le photon est absorbé. Cependant, un photon peut également être émis. La collision électron-phonon intervient également lors de la thermalisation entre les températures électroniques et ioniques.

Collision électron-électron : Il y a deux types de collisions électron-électron. Un électron de la bande de conduction peut collisionner un électron de valence, ce qui donne lieu à l'ionisation par impact. Ou les électrons de conduction collisionnent entre eux, ce qui donne lieu à la relaxation du gaz électronique appelée thermalisation électronique (on passe d'une distribution hors équilibre à une distribution de fermi dirac).

Au cours du temps une recombinaison des électrons de conduction vers les trous en bande de valence s'effectue. Ce processus de relaxation dépend directement des propriétés du matériau et peut être altéré au cours de l'irradiation laser. La relaxation peut être radiative ou non radiative avec l'émission d'un ou plusieurs photons ou phonons dont l'énergie émise correspond à l'énergie entre les deux bandes. Durant l'interaction, une altération du réseau cristallin peut se produire. Des niveaux intermédiaires et des défauts peuvent apparaître dans la bande interdite du matériau, appelés les excitons autopiégés (*Self Trapped Exciton (STE) en anglais*) [66]. Il résulte d'une distorsion du réseau dû à la création de paires électrons-trou, il apparaît uniquement pendant l'irradiation laser ou au cours de la relaxation électronique.

L'électron piégé dans ces niveaux intermédiaires peut avoir suivant le matériau un temps de relaxation beaucoup plus long et jusqu'à deux ordres de grandeur comparé au temps de recombinaison standard. Pour la silice, le temps d'autopiégeage moyen observé expérimentalement est de **150 fs** [67,68], ce qui correspond à la formation d'un exciton autopiégé. Le taux de recombinaison peut être exprimé suivant l'Eq. (6).

$$W_{rec}(t) = -\frac{N_e(t)}{\tau_{STE}} \quad (6)$$

Où  $\tau_{STE}$  est le temps d'autopiégeage moyen et  $N_e(t)$  est la population électronique de conduction. En prenant la silice comme matériau, **50 %** des porteurs libres relaxent en **100 fs** ( $\ln(2)\tau_{STE}$ ) et il ne reste plus que **10 %** des porteurs après **750 fs** ( $5\tau_{STE}$ ). Le Tableau 2 donne le temps d'autopiégeage moyen pour divers diélectriques, il varie de plusieurs ordres de grandeur suivant la nature du matériau.

Tableau 2. Temps de recombinaison électronique moyen pour la silice et le saphir.

Matériau	Silice [67,68], [69-71].	Saphir [68,71]
Temps d'autopiégeage moyen $\tau_{STE}$	150 fs	100 ps

#### 1.2.4. Évolution de la densité électronique en bande de conduction

La variation de la densité électronique en bande de conduction peut finalement être calculée par plusieurs modèles comme précédemment décrits. Chacun de ces modèles admet une zone de validité et des simplifications dans la description des phénomènes physiques. La forme la plus simplifiée pour décrire la variation de la densité électronique est décrite suivant une équation de taux dans l'Eq. (7) ci-dessous. Cette équation comprend le taux d'ionisation multiphotonique, le taux d'ionisation par impact et la recombinaison électronique. À noter que le taux de photoionisation calculé avec le modèle de Keldysh peut également être utilisé dans cette expression lorsque les intensités utilisées admettent une proportion d'ionisation multiphotonique et d'ionisation par effet tunnel équivalent. Dans ces travaux de thèse un modèle alternatif a été développé sur la base des équations des taux en y incorporant le modèle MRE développé par Rethfeld et en l'améliorant. Ce modèle sera décrit dans le Chapitre 2. Il est à noter que le modèle MRE proposé par Rethfeld devient en y incorporant la recombinaison électronique et en considérant uniquement une population électronique totale l'Eq. (7). Cependant, comme précédemment énoncé, le modèle MRE permet de décrire plus finement l'ionisation par impact.

$$\frac{dn_e}{dt} = W_{IPM} + W_{ii} + W_{STE} = \sigma_n I^N + \alpha n_e I - \frac{n_e}{\tau_{STE}} \quad (7)$$

### 1.3. Polarisabilité du matériau et fonction diélectrique

Le matériau se polarise sous l'influence du champ électromagnétique de l'impulsion laser. Cette polarisation n'est pas sans conséquence dans les processus d'interaction. Elle est à l'origine de l'évolution des propriétés physiques du matériau comme ses propriétés optiques. La propagation du champ électromagnétique dans celui-ci s'en retrouve directement affectée. La polarisation du matériau est essentiellement due à la polarisation électronique. Elle est à l'origine des phénomènes de dérive temporelle, du doublage de fréquence ou encore de la biréfringence induite par effet Kerr. La polarisation électronique provient d'une contribution des polarisations des électrons de valence et de conduction. Le modèle de Drude couplé à l'évolution de la densité électronique déterminée par les différents mécanismes d'ionisation et de relaxation précédemment décrit permet de définir la polarisation électronique des électrons de conduction. De ces deux contributions est déduite la fonction diélectrique qui permet d'évaluer les propriétés optiques du matériau : l'indice réel (de réfraction) et l'indice optique imaginaire qui caractérise l'absorption de l'onde dans le milieu.

#### 1.3.1. Polarisabilité du matériau.

Un matériau bien qu'électriquement neutre est constitué d'un ensemble de charges élémentaires, des protons chargés positivement et d'électrons chargés négativement par définition. Il est possible de définir trois types de polarisations. À l'échelle de la molécule, le barycentre des charges positives et des charges négatives peut parfois ne pas coïncider. Ces deux pôles de charges opposées forment un moment dipolaire permanent. C'est le cas de la molécule d'eau qui est une molécule polaire. Dans les composés d'ions négatifs et positifs, les dipôles seront induits par le déficit ou l'excès d'électrons dans la molécule, ou l'atome, produisant également un moment dipolaire. Le dernier type de polarisation est celui qui nous intéresse, c'est la polarisation du nuage électronique. En l'absence de champ électromagnétique, le moment dipolaire est nul, mais sous l'influence du champ électromagnétique les électrons se déplacent et créent un moment dipolaire dit induit. Ce phénomène est illustré par la Figure 10.

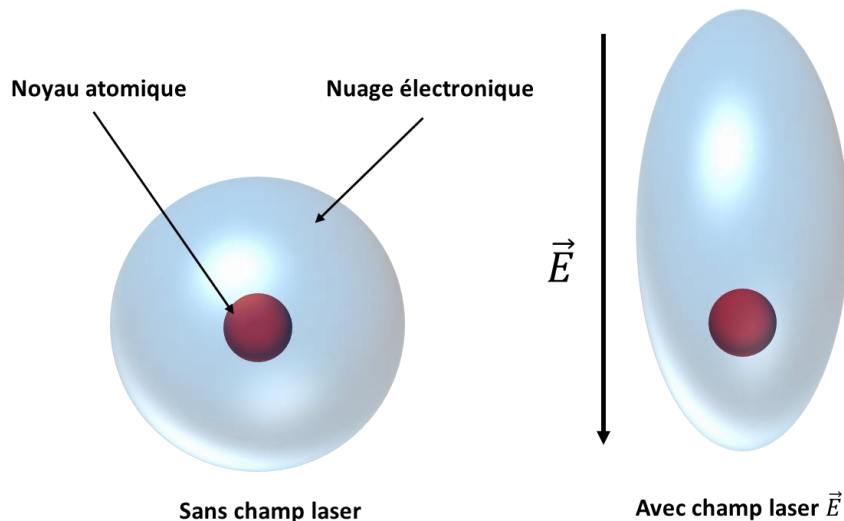


Figure 10. Moment dipolaire induit par un champ électromagnétique laser.

Les trois types de polarisations dépendent de la fréquence d'oscillation du champ électromagnétique. Typiquement les ondes métriques et millimétriques correspondent à des fréquences d'oscillation respectives en-dessous de  $10^{10}$  Hz et  $10^{13}$  Hz, elles ont un effet sur les molécules et les ions qui peuvent osciller dans le champ. À plus forte fréquence, l'influence du champ électromagnétique est négligeable sur les molécules et les ions. En effet, au fur et à mesure que celui-ci augmente, du fait de leur masse et leur inertie, les atomes ou ions ne peuvent plus suivre l'oscillation du champ, et il n'y a plus d'oscillation. Les électrons de masse beaucoup plus faible que la masse atomique peuvent toujours osciller et suivre l'oscillation du champ électromagnétique pour des fréquences de  $10^{14}$  -  $10^{16}$  Hz dans la gamme des rayons infrarouges et du visible. Suivant que l'électron se trouve dans la bande de valence (il est lié) ou dans la bande de conduction (il est libre), la réaction au champ électromagnétique est différente. Le champ électromagnétique induit est propre au rayonnement laser utilisé. Dans les procédés laser, les longueurs d'onde proches du visible sont très souvent utilisées, correspondant à des fréquences autour de  $10^{14}$  -  $10^{15}$  Hz. Ainsi, en première approximation, uniquement la polarisation électronique peut être considérée. Les diélectriques étant des éléments non ferromagnétiques et l'amplitude du champ magnétique associée au champ électrique laser étant proportionnelle à  $\frac{1}{c}$ , cette composante est aussi négligeable. Pour des intensités modérées, la polarisation décrit le domaine de l'optique linéaire. Lorsque l'intensité devient trop importante, l'amplitude d'oscillations du nuage électronique est si forte que la réponse n'est plus linéaire. La polarisation  $\vec{P}$  du matériau peut être développée comme une série de Taylor-Young [72]. Elle est composée d'une partie linéaire et non linéaire notée  $\vec{P}_L$  et  $\vec{P}_{NL}$  dans l'Eq. (8).

$$\vec{P} = \vec{P}_L + \vec{P}_{NL} \quad (8)$$

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \left( \underbrace{\chi^{(1)} \vec{E}}_{\text{Partie linéaire}} + \underbrace{\chi^{(2)} \vec{E}^2 + \chi^{(3)} \vec{E}^3 + \dots}_{\text{Partie non linéaire}} \right)$$

Où  $\varepsilon_0$  est la permittivité diélectrique du vide,  $\chi^{(n)}$  est le tenseur de susceptibilité diélectrique d'ordre  $i$  et de rang  $(i+1)$ .

### Partie linéaire et indice du matériau

La susceptibilité électrique linéaire  $\chi^{(1)}$  est un tenseur de rang 2. Elle est la principale contribution à la polarisation et définit au premier ordre l'indice de réfraction du milieu :

$$n(\omega_o) = \sqrt{1 + \text{Re}(\chi^{(1)}(\omega_o))} \quad (9)$$

Où  $\omega_o$  est la pulsation centrale du laser. À faible intensité et dans un milieu transparent (diélectrique) le champ électrique fait osciller le nuage électronique à la pulsation du laser et les électrons donnent naissance à une onde électromagnétique de même fréquence, mais avec un délai appelé déphasage par rapport à l'onde incidente. Ce déphasage est représenté par l'indice de réfraction et il varie avec la pulsation. Chacune des pulsations qui composent l'impulsion laser ont une vitesse de phase  $v_\phi$ . Les impulsions ultra courtes possèdent une largeur spectrale d'autant plus large que la durée d'impulsion est courte. Ainsi, pour des impulsions de quelques femtosecondes jusqu'à la centaine de femtosecondes, il convient de faire un développement de Taylor-Young autour de la pulsation centrale  $\omega_o$  pour le

coefficient de dispersion noté  $\beta(\omega) = \frac{2\pi}{\lambda}n(\omega)$  dans l'Eq. (10) avec un ordre de développement qui est d'autant plus grand que le spectre est large.

$$\beta(\omega) = \beta_0 + \beta_1(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}\beta_2(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6}\beta_3(\omega - \omega_0)^3 + \dots \quad (10)$$

$\beta_1$  est inversement proportionnelle à la vitesse de groupe appelée aussi la dispersion de la vitesse de groupe (*Group Velocity dispersion (GVD) en anglais*) donnés par l'Eq. (11). Physiquement ce terme représente la propagation de l'énergie ou du paquet d'ondes de l'impulsion laser. Le terme  $\beta_2$  caractérise la dispersion chromatique (*Group Delay Dispersion GDD en anglais*), qui représente la dispersion de la vitesse de groupe, elle est donnée par l'Eq. (12) [73,74].

$$\beta_1 = \frac{1}{v_g} = \frac{1}{c} \left( \overbrace{n + \omega \frac{dn}{d\omega}}^{n_{\text{groupe}}} \right) \quad (11)$$

$$\beta_2 = \frac{1}{c} \left( 2 \frac{dn}{d\omega} + \omega \frac{d^2n}{d\omega^2} \right) \quad (12)$$

Où  $v_g$  est la vitesse de groupe,  $c$  la vitesse de la lumière dans le vide,  $\omega$  la pulsation et  $n$  l'indice optique réel. Lors d'une propagation, la différence d'indice de réfraction pour chacune des pulsations composant l'impulsion laser conduit donc à des phénomènes de dérive temporelle (*chirp en anglais*). L'impulsion se retrouve alors étirée temporellement avec une dérive de sa fréquence instantanée et un front d'onde éventuellement tilté lorsque celle-ci traverse un milieu transparent. La dispersion est dite normale lorsque les fréquences les plus basses voient un indice de réfraction inférieur aux hautes fréquences, c'est-à-dire qu'elles se déplacent plus vite comme illustré en Figure 11. La dispersion est dite anormale lorsque l'inverse se produit.

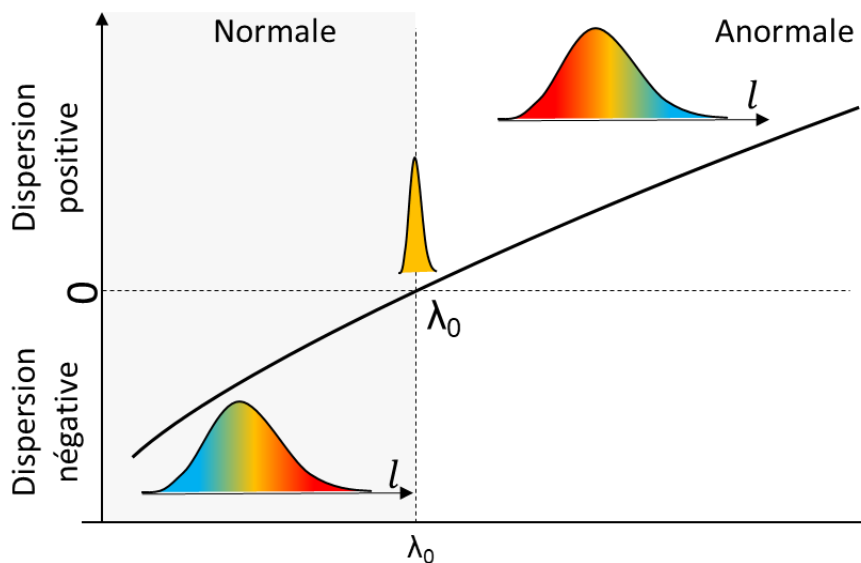


Figure 11. Illustration de la dispersion chromatique lorsqu'une impulsion courte traverse un milieu transparent (cube polariseur, lame demi-onde, lentille,...).

### Polarisation non linéaire : influence de $\chi^{(2)}$

La susceptibilité électrique d'ordre 2 :  $\chi^{(2)}$  est responsable du phénomène de conversion de fréquence existant au sein de certains cristaux ne présentant pas de centre de symétrie. En effet, le mouvement des électrons pouvant se décomposer comme la somme des multiples de fréquences paires et impaires du rayonnement incident. Dans ces cristaux non centrosymétriques, les électrons donnent naissance à des fréquences multiples mais seules subsistent les ordres pairs. C'est la raison pour laquelle pour un champ suffisamment intense, il est possible de faire de la conversion de fréquence, comme le doublage de fréquence. Ce phénomène fait intervenir trois ondes, c'est pourquoi il s'appelle mélange à trois ondes. D'autres conditions doivent exister comme la cohérence temporelle et l'accord de phase sur chaque fréquence (l'indice de réfraction doit être le même pour chacune des fréquences). Pour un cristal possédant un centre de symétrie, la susceptibilité électrique d'ordre 2 :  $\chi^{(2)}$  est nulle et le doublage de fréquence n'est pas possible. Un autre effet bien connu est l'effet Pockels ou le cristal, sous l'effet d'un champ électrique statique introduit une biréfringence (indice non isotrope dans un solide). La biréfringence induite est proportionnelle au champ électrique statique appliqué. Il est ainsi possible de générer une lame à retard temporaire quart-onde, demi-onde ou autre. L'effet Pockels est parfois utilisé dans les laser pour éliminer le retour de la lumière dans la cavité. Cette découverte a participé à la création de laser impulsionnel à forte puissance moyenne.

### Polarisation non linéaire : influence de $\chi^{(3)}$

La susceptibilité électrique d'ordre 3 :  $\chi^{(3)}$  fait intervenir un mélange à quatre ondes. Elle donne lieu à la génération de la troisième harmonique ou de l'effet Kerr qui induit de la biréfringence  $n_2$  proportionnelle au carré du champ électrique, c'est-à-dire à l'intensité laser. L'indice de réfraction qui en résulte s'écrit :

$$n(\omega) = n_L(\omega) + n_2(\omega)I(t)$$

Avec

$$n_2(\omega) = \frac{3 \chi^{(3)}(\omega)}{4 \epsilon_0 c n_L(\omega)^2} \quad (13)$$

Où  $n_L$  est l'indice linéaire de réfraction et  $n_2$  l'indice non linéaire de réfraction. Il est important de noter que l'indice de réfraction non linéaire est dépendant de la fréquence, de la longueur d'onde, de la durée d'impulsion et de la polarisation du champ. Cependant, leur influence est très souvent négligée. Le ratio entre l'indice non linéaire pour un faisceau laser polarisé linéairement et circulairement est d'environ  $n_2^{lin}/n_2^{cir} = 1,5$  [75]. Pour les verres en général, l'indice de réfraction non linéaire est compris entre  $5 \times 10^{-19}$  et  $5 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$  [75–80]. Pour la silice à une longueur d'onde de  $1 \mu\text{m}$ ,  $n_2 = 3,2 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$  [75],  $n_2 = 2,9 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$  pour le verre saphir alors que dans l'air  $n_2 = 4,5 \times 10^{-23} \text{ m}^2/\text{W}$  [36]. L'intensité spatiale de l'impulsion n'étant généralement pas uniforme, mais naturellement gaussienne, il s'ensuit une variation de phase spatiale :

$$\varphi_0(r, t) = [n_L(\omega_0) + n_2(\omega_0) \cdot I(t, r)] k_0 L - \omega_0 t \quad (14)$$

Où  $L$  la longueur de propagation,  $k_0$  le vecteur d'onde et  $\omega_0$  la pulsation,  $I$  l'intensité laser et  $n_2$  l'indice non linéaire de réfraction. Le déphasage induit par la non-linéarité s'écrit suivant la relation :



$$\Delta\Phi_0(r, t) = \frac{2\pi}{\lambda_0} L n_2(\omega_0) \cdot I(t, r) = k_0 L n_2(\omega_0) \cdot I(t, r) \quad (15)$$

Pour un faisceau d'intensité spatiale gaussienne, la phase non linéaire induite par l'effet Kerr est analogue à la phase introduite par une lentille convergente. Ainsi, au fur et à mesure que l'impulsion se propage, l'intensité devient de plus en plus grande et le gradient de phase de plus en plus fort, le faisceau converge. Ce phénomène s'appelle l'auto-focalisation. L'effet Kerr commence à opérer lorsque la puissance critique  $P_{cr}$  est atteinte [75], elle est définie par la relation suivante :

$$P_{cr} = \frac{\pi(0.61)^2 \lambda^2}{8n_0 n_2} \quad (16)$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde,  $n_0$  l'indice de réfraction linéaire et  $n_2$  l'indice non linéaire de réfraction. La puissance critique dans la silice est d'environ  $P_{cr} \approx 3,4 \text{ MW}$  (calculé avec  $n_0 = 1,45$ ,  $\lambda = 1030 \text{ nm}$ ,  $n_2 = 3,2 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ ). Elle est atteinte pour une impulsion de  $1,8 \mu\text{J}$  et de durée d'impulsion  $500 \text{ fs}$ . La différence de puissance critique varie d'un facteur  $P_c^{lin}/P_c^{cir} = 1,5$  en considérant une polarisation circulaire ou linéaire. À noter que dans la matière, les porteurs libres générés par l'ionisation des électrons de valence créent un gradient d'indice analogue à une lentille divergente (pour un profil spatial gaussien d'intensité qui donne lieu à une densité électronique plus importante au centre que sur les ailes), il y a alors une compétition entre l'indice non linéaire induit par l'effet Kerr et l'indice de réfraction modulé par les porteurs libres. La compétition entre l'effet Kerr et la divergence peut conduire à l'apparition de filament.

Un autre effet important de l'effet Kerr est l'auto-modulation de phase (*Self Phase Modulation SPM en anglais*). L'automodulation de phase induite par effet Kerr engendre un élargissement spectral de l'impulsion. En effet, lorsque l'intensité varie dans le temps, une fluctuation temporelle de la phase apparaît. La pulsation instantanée de la phase est définie comme la dérivée temporelle de la phase. Dans un régime non linéaire d'ordre deux, la pulsation s'écrit :

$$\omega(t) = -\frac{d\varphi(t)}{dt} = \omega_0 - \frac{2\pi n_2 L}{\lambda_0} \cdot \frac{dI(t)}{dt} \quad (17)$$

Le déphasage non linéaire introduit de nouvelles fréquences dans l'impulsion au cours du temps modifiant son spectre. Au début de l'impulsion, la dérivée de l'intensité étant positive ( $\frac{dI(t)}{dt} > 0$ ), de basses fréquences sont générées (composante spectrale rouge, dans l'illustration en Figure 12), après l'intensité crête, la dérivée devient négative ( $\frac{dI(t)}{dt} < 0$ ) et de hautes fréquences sont générées (composantes spectrales bleues dans l'illustration en Figure 12). L'auto-modulation de phase est un effet qui est parfois recherché, notamment dans la génération de supercontinuum. En outre, certains lasers accordables en longueur d'onde se basent sur ce principe.

Dans le cadre de ces travaux, il sera considéré une onde monochromatique plane de pulsation  $\omega_0$ . La polarisation des électrons de conduction peut être calculée en utilisant le modèle de Drude. La contribution des électrons de valence et de conduction à la polarisation permet de déterminer la fonction diélectrique qui régit les propriétés optiques du matériau.

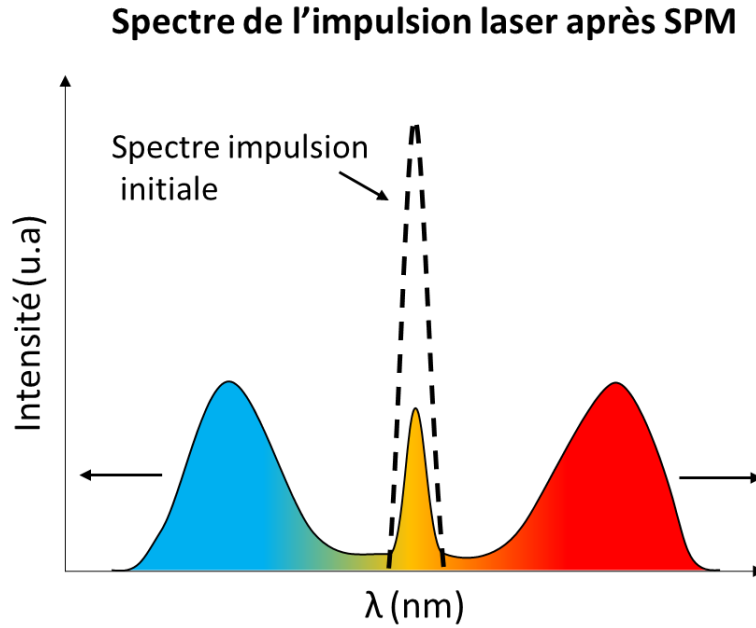


Figure 12. Illustration de l'automodulation de phase (SPM) induite par l'effet Kerr. Elle engendre un élargissement spectral de l'impulsion, modifié de [73].

### 1.3.2. Fonction diélectrique, modèle de Drude et propriétés optiques

La fonction diélectrique du matériau  $\varepsilon$  se calcule au premier ordre en évaluant le vecteur déplacement défini comme  $\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \sum \vec{P}$  en sommant l'ensemble des contributions qui polarise le milieu. La polarisation des électrons de valence (liés)  $\vec{P}_v = \varepsilon_0 \chi_v \vec{E}$  et de conduction (libre)  $\vec{P}_c = \varepsilon_0 \chi_c \vec{E}$  sont les deux principales contributions à la polarisation du milieu, où  $\chi_v$  et  $\chi_c$  sont respectivement la susceptibilité électrique en bande de valence et en bande de conduction. La fonction diélectrique notée  $\varepsilon$  est définie par :

$$\varepsilon = \underbrace{1 + \chi_v}_{\varepsilon_v} + \chi_c \quad (18)$$

Où  $\varepsilon_v$  est la fonction diélectrique en bande de valence, elle correspond à la constante diélectrique lorsque le milieu n'est pas excité, elle est égale au carré de l'indice de réfraction ( $n_o^2$ ). Lorsque des porteurs libres sont générés durant l'irradiation laser, la population en bande de valence décroît. L'évolution de la fonction diélectrique en bande de valence peut alors s'écrire comme :

$$\varepsilon_v = 1 + (n_o^2 - 1) \left( \frac{n_v - n_e}{n_v} \right) \quad (19)$$

où  $n_v$  est la population électronique initiale en bande de valence et  $n_e$  est la population électronique en bande de conduction. La susceptibilité électrique en bande de conduction  $\chi_c$  peut se calculer par un modèle classique comme le modèle de Drude [81].

### Le modèle de Drude

Les porteurs libres générés lors de l'ionisation subissent deux types de force. La force électrique  $\vec{F}_{\text{électrique}} = -e\vec{E}$ ,  $\vec{E}$  étant le champ électrique laser et  $e$  la charge de l'électron, puis une force de frottement  $\vec{F}_{\text{frottement}} = -\frac{m_e}{\tau_c}\vec{v}$ , où  $m_e$  est la masse de l'électron,  $\tau_c$  est le temps moyen de collision des électrons avec les autres particules et  $\vec{v}$  la vitesse de l'électron. Le temps de collision  $\tau_c$  est compris entre 0,1-10 fs [19,82-85] pour la silice et dans le modèle de Drude il est supposé constant. Le mouvement de l'électron est donné par :

$$m_e \cdot \frac{d^2 \vec{r}_e}{dt^2} = e\vec{E} - \frac{m_e}{\tau_c} \cdot \frac{d\vec{r}_e}{dt} \quad (20)$$

La position de l'électron est donnée par l'Eq. (21) en fonction du champ électrique  $\vec{E} = \vec{E}_0 e^{-i\omega t}$  (en appliquant une transformée de Fourier de l'Eq. (20)).

$$\vec{r}_e = \frac{e \tau_c}{m_e \omega} \cdot \frac{-i}{(1 + i\omega\tau_c)} \vec{E} \quad (21)$$

Où  $\omega$  est la pulsation du laser. La polarisation en bande de conduction s'écrit  $\vec{P}_c = -n_e e \vec{r}_e = \varepsilon_0 \chi_c \vec{E}$ , ainsi par identification  $\chi_c$  est donnée par :

$$\chi_c = \frac{n_e e^2}{m_e \varepsilon_0} \cdot \frac{i \tau_c}{\omega(1 + i\omega\tau_c)} \quad (22)$$

### Fonction diélectrique

En substituant les termes de l'Eq. (18), par l'Eq. (19) et l'Eq. (22) la fonction diélectrique finale est donnée par :

$$\varepsilon = 1 + (n_o^2 - 1) \left( \frac{n_v - n_e}{n_v} \right) + i \frac{\omega_p^2}{\omega \left( \frac{1}{\tau_c} - i\omega \right)} \quad (23)$$

Où  $\omega_p = \sqrt{\frac{n_e e^2}{m_e \varepsilon_0}}$  est la pulsation plasma du matériau. La densité critique plasma est définie comme :

$$n_c = \frac{\omega^2 m_e \varepsilon_0}{e^2} \quad (24)$$

Elle correspond à la densité électronique atteinte lorsque la pulsation plasma  $\omega_p$  est égale à la pulsation optique  $\omega$ . Elle varie inversement proportionnelle à  $\lambda^2$ . Pour une longueur d'onde de 1030 nm,  $n_c \approx 1,05 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ . Cette grandeur est importante, car autour de la densité électronique critique, les propriétés optiques du matériau changent significativement.

### Évolution des propriétés du matériau.

La fonction diélectrique est une fonction complexe, elle peut être décomposée comme une fonction comportant une partie réelle notée  $\varepsilon_1$  et une partie imaginaire notée  $\varepsilon_2$ . Par définition, l'indice complexe  $N$  est composé de l'indice réel  $n$  appelé indice de réfraction et d'un indice imaginaire  $k$ . L'indice complexe est lié à la fonction diélectrique  $\varepsilon$  par la relation :

$$N^2 = \varepsilon = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2 \quad (25)$$

La résolution du système d'équations donnée par l'Eq. (25) permet en résolvant un polynôme d'ordre 4, de calculer l'indice de réfraction réel et imaginaire donné respectivement par les Eqs. (26) et (27).

$$n = \sqrt{\frac{\sqrt{(\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2)} + \varepsilon_1}{2}} \quad (26)$$

$$k = \sqrt{\frac{\sqrt{(\varepsilon_1^2 + \varepsilon_2^2)} - \varepsilon_1}{2}} \quad (27)$$

Les coefficients de transmission  $T$  et de réflexion  $R$  sont donnés respectivement par l'Eq. (28) et l'Eq. (29) pour une interface vide/matériau. Ces coefficients sont calculés par les relations de Fresnel pour un matériau homogène et pour un rayon incident à la normale au dioptre [86].

$$R = \left(\frac{n - k}{n + k}\right)^2 \quad (28)$$

$$T = \frac{4n}{(n + k)^2} \quad (29)$$

Au cours de l'ionisation, la réponse optique du matériau évolue. La Figure 13(a) représente l'évolution des parties réelle et imaginaire de l'indice optique en fonction de la densité électronique normalisée à la densité critique pour un temps de collision moyen entre les électrons de 1 fs. La Figure 13 (b) montre l'évolution des coefficients de réflexion et de transmission sur la même plage de variation de la densité électronique normalisée.

- $\omega_p \ll \omega$  : la fonction diélectrique est une fonction principalement réelle puisque sa partie imaginaire tend vers 0 et l'indice imaginaire  $k$  aussi. Le matériau est transparent à la pulsation  $\omega$ .
- $\omega_p \approx \omega$  : la partie imaginaire de la fonction diélectrique devient non négligeable, l'indice réel chute alors que l'indice imaginaire augmente. Le matériau devient absorbant.
- $\omega_p \gg \omega$  : l'indice imaginaire devient significativement important pour que l'onde incidente devienne totalement évanescence. Le matériau est réfléchissant à la pulsation  $\omega$ .

Le temps de collision  $\tau_c$  joue également un rôle dans la réponse optique du matériau. Lorsque :

- $\tau_c \omega \ll 1$  : régime fortement collisionnel. L'électron subit un grand nombre de collisions dans un cycle optique. Les collisions sont si nombreuses que l'accélération n'est pas suffisante entre deux collisions procurant un faible gain en énergie.
- $\tau_c \omega \approx 1$  : régime collisionnel. L'électron subit des collisions sur un cycle optique. L'accélération de l'électron sur une période d'environ un cycle optique permet à l'électron d'absorber une grande quantité d'énergie.
- $\tau_c \omega \gg 1$  : régime non collisionnel. L'électron ne subit quasiment pas de collision sur un cycle optique, il oscille en phase avec le champ électrique sans absorber d'énergie.

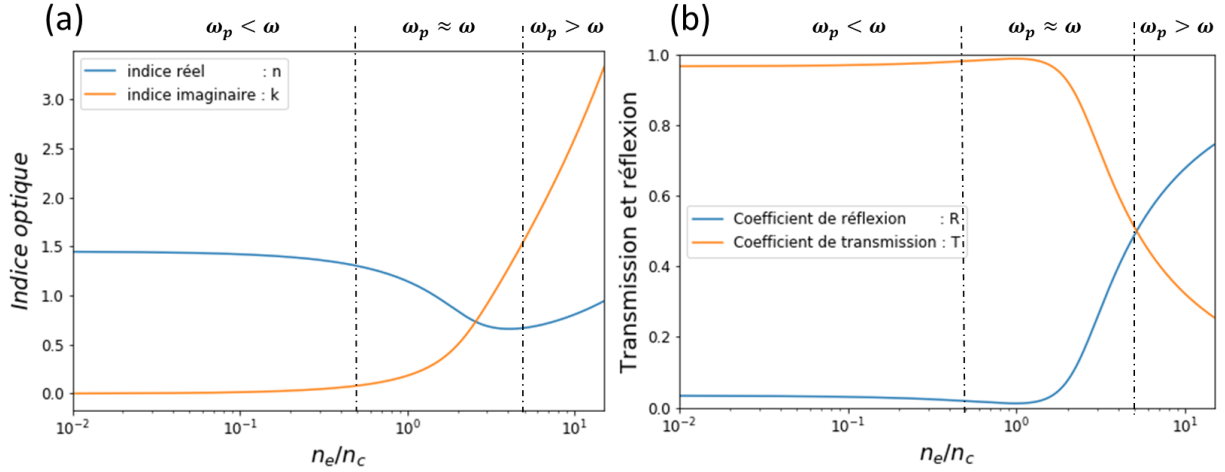


Figure 13. Évolution de l'indice réel et imaginaire en (a) et des coefficients de transmission et de réflexion en (b) en fonction de la densité électronique normalisée à la densité électronique critique.

#### 1.4. Calcul du dépôt d'énergie

L'évolution du champ électromagnétique laser couplé aux équations de la matière décrivent la réponse du milieu sous l'action du champ électrique. La propagation de l'impulsion laser dans le matériau sont décrits par les équations de Maxwell pour un milieu non magnétique :

$$\begin{aligned}
 (a) \quad \text{div } \vec{D} &= \rho \\
 (b) \quad \text{div } \vec{B} &= 0 \\
 (c) \quad \overrightarrow{\text{rot}} \vec{B} &= \mu_0 \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} + \vec{j} \\
 (d) \quad \overrightarrow{\text{rot}} \vec{E} &= -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}
 \end{aligned} \tag{30}$$

Où  $\vec{D}$  est le vecteur déplacement électrique,  $\vec{B}$  et  $\vec{E}$  sont respectivement le champ magnétique et électrique.  $\mu = \mu_0$  est la perméabilité magnétique du vide (milieu non magnétique) et  $\vec{j}$  est la densité de courant externe. Initialement, il n'y a aucune charge extérieure  $\rho = 0$  et pas de courant  $\vec{j} = \vec{0}$ . En

injectant le vecteur déplacement  $\vec{D} = \varepsilon_0(\chi_c + \varepsilon_v)\vec{E} = \varepsilon\vec{E}$  dans la relation (30.c), puis dans la relation (30.d), auquel l'opérateur rotationnel a été appliqué, il vient (en supposant que  $\varepsilon$  varie lentement dans le temps) l'équation d'Helmholtz qui régit la propagation du champ électrique pour un milieu homogène et isotrope :

$$\nabla^2 \vec{E} - \mu_0 \varepsilon \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \vec{0} \quad (31)$$

La résolution de l'Eq. (31) suivant l'axe  $z$  (en 1 D, c'est-à-dire sous incidence normale au matériau) est donnée par le champ électrique d'une onde plane :

$$\vec{E} = \vec{E}_0 e^{i\frac{\omega\sqrt{\varepsilon}}{c}z} = \vec{E}_0 e^{-\xi_2 z} e^{i(\omega t - \xi_1 z)} \quad (32)$$

Où  $c = \frac{1}{\sqrt{\varepsilon_0 \mu_0}}$  la vitesse de la lumière dans le vide,  $\xi_1 = n \frac{\omega}{c}$  le vecteur d'onde réel et  $\xi_2 = k \frac{\omega}{c}$  le vecteur d'onde imaginaire avec respectivement  $n$  et  $k$  l'indice réel et imaginaire défini dans les Eqs. (26) et (27). Le vecteur d'onde imaginaire  $\xi_2$  caractérise l'absorption de l'onde dans le milieu. Il est ainsi possible de calculer une longueur de pénétration définie comme l'inverse du vecteur d'onde.

$$\delta = \frac{1}{\xi_2} = \frac{c}{\omega k} \quad (33)$$

L'absorption linéaire du champ électrique sur l'épaisseur de peau est illustrée en Figure 14. L'intensité est donnée par la relation suivante, en utilisant l'Eq. (32) [19]. Il s'agit de la loi de Beer-Lambert :

$$I = I_0 e^{-\frac{2z}{\delta}} \quad (34)$$

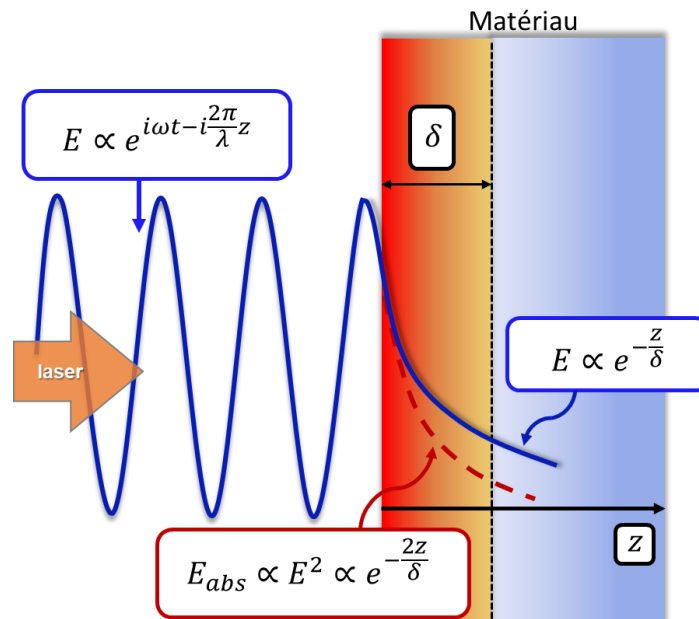


Figure 14. Absorption linéaire du champ électrique ou de l'intensité laser sur l'épaisseur de peau (en rouge) dans un matériau diélectrique [19].

Dans l'étude des diélectriques et en impulsion courte, de nombreux auteurs [19,87] considèrent que l'absorption se réalise exclusivement sur l'épaisseur de peau.

## 2. Réponse macroscopique de la matière après irradiation laser

Durant l'irradiation laser sub-picoseconde, les sous-systèmes électronique et ionique sont fortement hors équilibre. Il s'ensuit une phase de thermalisation électronique et ionique. L'énergie du flux laser absorbée par les électrons va être transmis vers la matrice. La température de la matrice augmente alors très rapidement en quelques picosecondes. Les forts gradients de température générés dans la matrice suite au dépôt d'énergie laser mènent à de la dilatation et d'importantes différences de pressions (MPa-TPa). Sur des échelles de temps de quelques picosecondes à la nanoseconde, des changements de phases apparaissent en fonction des conditions de pression et de température ainsi que des déformations de la matière par relaxation hydrodynamique et mécanique. Dans le même temps et jusqu'à plusieurs microsecondes, la température diffuse dans le matériau par conduction. Dans ce qui suit, il s'agit de s'intéresser aux mécanismes donnant lieu à l'élévation de la température de la matrice, de la dissipation de la chaleur dans le matériau et de comprendre les comportements thermomécaniques du matériau. Un modèle permettant d'évaluer la tenue mécanique élastique du matériau y est décrit. Les mouvements hydrodynamiques lors de la relaxation de la matière chauffée confinée dans le matériau froid ne sont pas détaillés, car ils ne sont pas abordés dans le cadre de ces travaux de thèse. Cependant, les mouvements hydrodynamiques peuvent être décrits par les équations de conservation d'Euler [88].

### 2.1. Diffusion de la chaleur

Dans le cas d'une irradiation laser sub-picoseconde, l'énergie absorbée à la fin de l'impulsion est essentiellement portée dans les électrons de conduction sous forme d'énergie cinétique. Ces électrons thermalisent entre eux très rapidement du fait des collisions électron-électron et une température électronique peut-être définie. Le temps caractéristique de cette thermalisation est de l'ordre de plusieurs dizaines de femtosecondes [20]. Thermodynamiquement, les deux sous-systèmes température électronique ( $T_e$ ) et ionique ( $T_i$ ), sont fortement hors équilibre avec  $T_e \gg T_i$ . Au travers de collisions électrons-phonons, les électrons transfèrent une partie de leur énergie aux ions, élevant ainsi la température du sous-système ionique comme l'illustre la Figure 15. Après un grand nombre de collisions électron-phonon, l'équilibre des températures ioniques et électroniques est atteint ( $T_e = T_i$ ) au temps  $t_{e-ph}$ , appelé temps de relaxation électron-phonon. La thermalisation des températures électronique et ionique nécessite plusieurs picosecondes dans les diélectriques [19,20]. Le transport de l'énergie par les porteurs libres est supposé négligeable. En effet, l'électron parcourt au maximum une dizaine de nanomètres (en considérant une énergie acquise par les électrons de quelques eV, leur vitesse atteint environ  $2 \times 10^6$  m/s pour un temps de collision électronique d'environ 5 fs). Cette distance est négligeable par rapport aux dimensions caractéristiques du volume sur lequel se fait le dépôt d'énergie qui est de l'ordre du micromètre [19].

Par conservation de l'énergie, l'évolution de la température électronique et ionique est décrite par le modèle à deux températures [89,90] :

$$\begin{aligned} C_{ve} \frac{\partial T_e}{\partial t} &= \nabla(\lambda_e \nabla T_e) - \gamma(T_e - T_i) + S \\ C_{vi} \frac{\partial T_i}{\partial t} &= \nabla(\lambda_i \nabla T_i) + \gamma(T_e - T_i) \end{aligned} \quad (35)$$

Il s'agit de deux équations couplées. Où  $S$  est le terme source du chauffage laser,  $\gamma$  est le terme de couplage électron-phonon,  $\lambda_e$  et  $\lambda_i$  sont respectivement la conductivité thermique électronique et ionique.  $C_{ve}$  et  $C_{vi}$  sont respectivement la capacité calorifique électronique et ionique. Pour des impulsions subpicosecondes, l'équilibre thermique électronique et ionique sera alors atteint bien après l'impulsion laser ( $\sim 10$  ps). Du fait des caractéristiques des impulsions courtes sur la dynamique thermique, l'élévation maximale de la température dans la matrice est atteinte avant que celle-ci ne diffuse par conduction. En supposant un couplage électron-phonon de 100% (pas de perte) durant le transfert d'énergie entre les électrons et les phonons et par conservation de l'énergie, la température maximale atteinte à l'équilibre ( $T_e = T_i = T$ ) par le réseau pour une énergie absorbée  $E_{abs}$  [19] est donné par la relation suivante :

$$T_i = \frac{E_{abs}}{C_{ve} + C_{vi}} \quad (36)$$

En général, la capacité calorifique des électrons est supposée comme négligeable devant la capacité calorifique ionique ( $C_{vi} \gg C_{ve}$ ) [19]. Le flux par convection et par rayonnement peut aussi participer à la dissipation de l'énergie, mais ils peuvent être négligés, car le calcul d'ordre de grandeur montre que le flux par conduction domine de près de quatre ordres de grandeur le flux par convection et de rayonnement [91]. Aussi, dans l'équation de diffusion de la température, il est possible de négliger la diffusion de la chaleur induit par le champ de déplacement étant donné que la capacité calorifique à volume et pression constante sont très proches pour un solide ( $C_v \approx C_p$ ) [92].

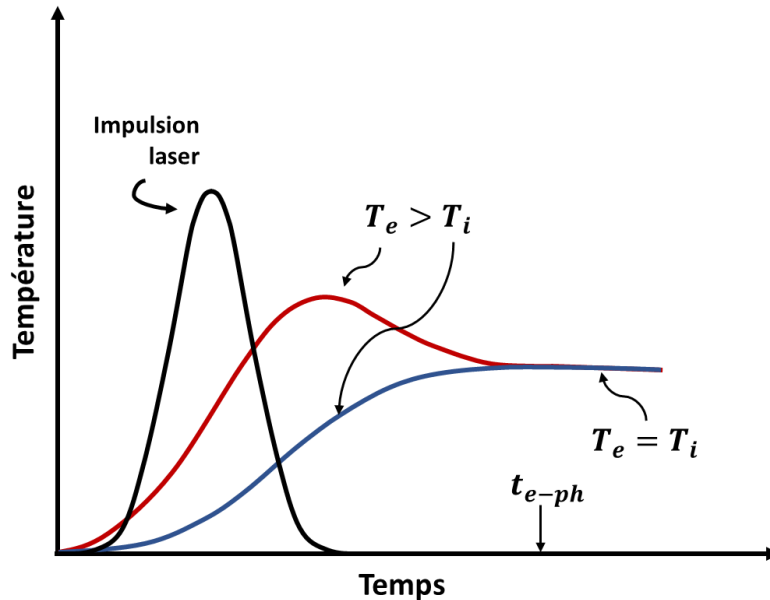


Figure 15. Évolution temporelle de la température électronique et ionique. Le temps de thermalisation  $t_{e-ph}$  entre la température électronique et ionique est de l'ordre de la dizaine de picosecondes dans les diélectriques [19].



La longueur caractéristique de diffusion peut être calculée par la relation :

$$l_{dif} = \sqrt{\frac{\lambda_l}{C_{vi} \rho}} \cdot \tau \quad (37)$$

Où  $\lambda_l$  est la conductivité thermique du réseau,  $\rho$  est la masse volumique,  $C_{vi}$  la capacité calorifique massique à pression constante du matériau et  $\tau$  le temps. Pour la silice avec  $\lambda_l = 1,4 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ,  $C_{vi} = 800 \text{ J} \cdot \text{Kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$  et  $\rho = 2,27 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$  et pour un temps  $\tau = 10 \mu\text{s}$ , la longueur caractéristique de diffusion est d'environ  $3 \mu\text{m}$ . Comme vu précédemment, la diffusion de la température est un phénomène qui entre en jeu dès la centaine de picosecondes. Dans la gamme de temps qui correspond à la restructuration du matériau (jusqu'à la nanoseconde), les distances caractéristiques typiques de diffusion thermique sont très faibles et de l'ordre de quelques nanomètres. Ainsi, durant cette phase, les gradients de température sont donc toujours très importants et correspondent à celle du dépôt d'énergie. Sur des échelles de temps plus importantes, de l'ordre de la milliseconde, la longueur caractéristique de diffusion est plus significative à l'échelle macroscopique et elle est l'ordre de quelques centaines de micromètres.

## 2.2. Réponse thermomécanique du matériau

Les céramiques sont définies comme étant l'ensemble des solides inorganiques non-métalliques. Les verres sont des céramiques transparentes amorphes. Mécaniquement, les céramiques et les verres ont été classés dans la catégorie des matériaux fragiles en raison de leur mauvaise aptitude à absorber les chocs sans dommage et ils ont une faible ductilité. D'un point de vue microscopique, l'édifice d'un solide est assuré par des liaisons fortes de type covalent, ionique ou métallique, qui se désagrègent entre  $1000 - 5000 \text{ K}$  suivant le matériau et la nature de la force. Les liaisons de Van der Waals (attraction entre atomes/molécules d'origine dipolaire) sont des liaisons plus faibles qui se rompent à des températures de  $100 - 500 \text{ K}$ . La liaison covalente qui provient de la mise en commun d'orbitale électronique est la liaison dominante dans les verres et les céramiques [93]. L'énergie potentielle qui résulte de la force de covalence est analogue en régime linéaire à celle de l'oscillateur harmonique comme illustrée sur la Figure 16. La force exercée par les liaisons covalentes peut alors être modélisée par une force  $F = k(d - d_0)$  ou  $k$  est la raideur du ressort,  $(d - d_0)$  est l'allongement. En l'absence de sollicitation extérieure, la position interatomique correspond à  $d_0$  (ou l'énergie potentielle est minimale), la force de rappel est nulle. Pour une force ou un apport d'énergie sous forme de chaleur, l'équilibre est rompu et la distance séparant chaque molécule ou atome s'allonge d'une distance  $(d - d_0)$ , augmentant la force de rappel. Suivant l'intensité du déséquilibre, différents scénarios sont possibles :

- i. La force de rappel ne suffit pas à ramener l'atome à sa position d'équilibre, les liaisons se rompent, il y a rupture. C'est typiquement ce qui se passe pour un changement de phase. Pour la silice lorsque cette force atteint  $1,8 - 2,2 \times 10^{10} \text{ N} \cdot \text{m}^{-2}$  [94], la rupture des liaisons se produit correspondant à la position  $d_{max}$  dans la Figure 16.
- ii. La force apportée au système peut être suffisamment importante pour modifier l'édifice cristallin et le potentiel atomique, modifiant irréversiblement la position d'équilibre. Il y a une déformation permanente, il s'agit d'une déformation plastique.

- iii. La force apportée au système n'est pas suffisamment forte pour vaincre la force de rappel qu'exercent les liaisons covalentes ou pour modifier de façon importante l'édifice cristallin. La variation de distance entre la position et la position d'équilibre reste faible (inférieure à  $d_e$  sur la Figure 16), les déformations sont proportionnelles à la force. Il s'agit du régime élastique et où le modèle de l'oscillateur harmonique s'applique. Lorsque la source d'excitation disparaît, l'atome ou la molécule retourne à sa position d'équilibre en  $d_0$ .

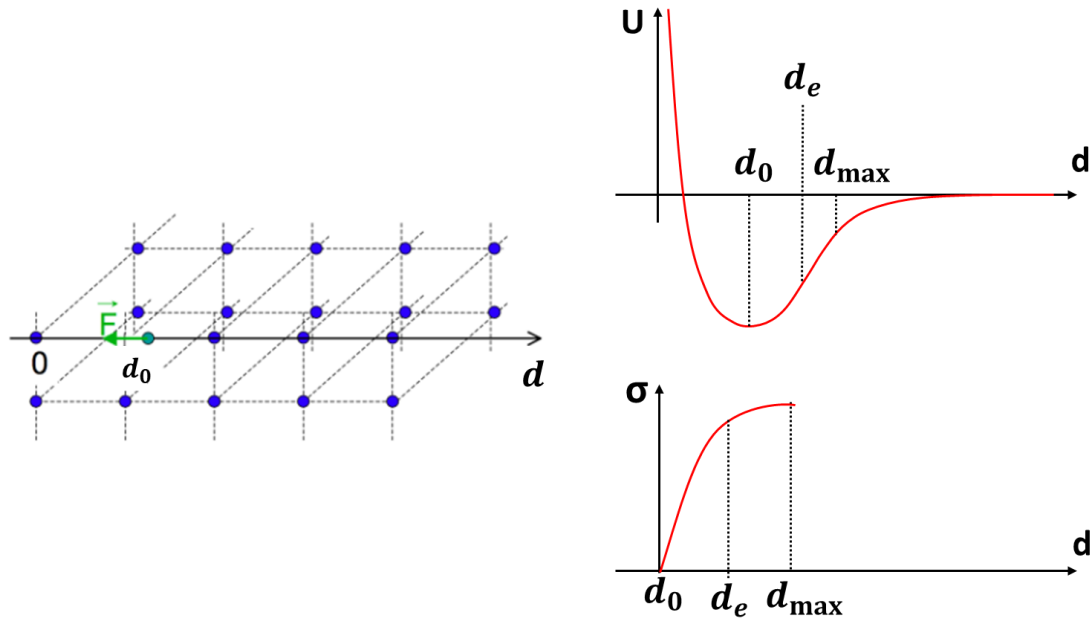


Figure 16. Déplacement interatomique dans un matériau à gauche, potentiel atomique  $U$  et contraintes  $\sigma$  à droite. La distance  $d_0$  est la position d'équilibre. Suite à une force externe ou à l'apport d'énergie sous forme de chaleur, la position tend à augmenter. Lorsque la position reste inférieure à la distance  $d_e$  les contraintes restent proportionnelles aux déformations, c'est vrai dans le cadre de petite déformation. Ce régime est dit élastique, car en l'absence de force extérieure ou d'élévation de température, le système revient à sa position d'équilibre. Lorsque la distance  $d_e$  est dépassée, les déplacements sont trop importants pour que la contrainte reste proportionnelle aux déformations et le système ne peut plus revenir à l'équilibre. Si la distance  $d_{max}$  est atteinte, la rupture apparaît.

D'un point de vue mésoscopique et macroscopique c'est le module de Young  $E_{yg}$  (module d'élasticité) [95] qui rend compte de la raideur du système. Pour des matériaux durs, le module de Young est élevé ( $E_{yg} \cong 2 \times 10^{11}$  Pa pour l'acier), il est plus faible pour des matériaux mous ( $E_{yg} \cong 2 \times 10^6$  Pa pour le caoutchouc et pour le verre  $E_{yg} \cong 6 \times 10^{10}$  Pa). La Figure 17 illustre l'évolution des contraintes en fonction des déformations. La description est tout à fait analogue au plan microscopique. Tout d'abord, lorsque la déformation augmente, la variation de contrainte varie linéairement avec la déformation selon la loi de Hooke. Lorsque la déformation augmente davantage, la contrainte varie non linéairement avec la déformation, elle est caractérisée par une zone plastique. Si la déformation continue d'augmenter alors la rupture apparaît.

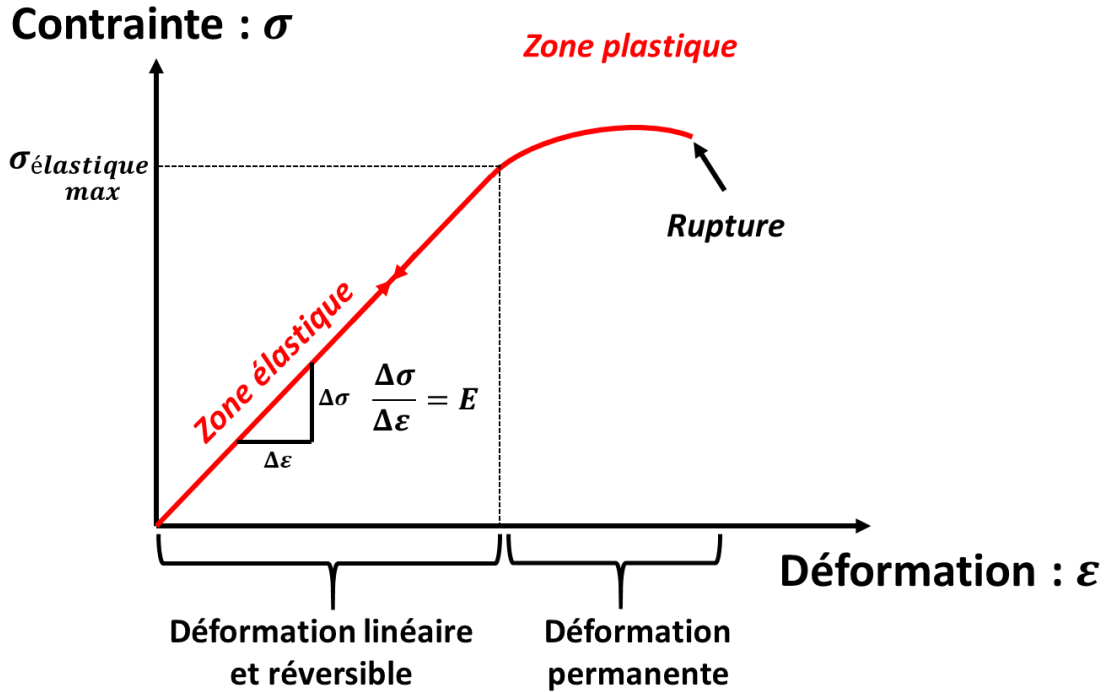


Figure 17. Comportement du matériau face à une déformation d'un point de vue macroscopique. Ici sont retrouvées les trois zones précédemment expliquées sur une vue microscopique. La contrainte évolue linéairement avec la déformation, avec  $E_{yg}$  le module de Young. Une déformation trop importante entraîne une déformation permanente, la zone dite plastique est atteinte. Si la déformation est encore plus importante la rupture apparaît.

Après l'irradiation laser (quelques picosecondes), la température de la matrice augmente brutalement dans la zone irradiée. Sous l'élévation de la température le matériau se dilate et se déforme (dilatation thermique). Ces déformations génèrent des contraintes et des ondes acoustiques peuvent se propager dans le matériau. La propagation de ces ondes est décrite par l'équation suivante [92] :

$$\rho \ddot{\vec{u}} = \overline{\text{div}} \vec{\sigma} \quad (38)$$

Où  $\rho$  est la masse volumique,  $\vec{u}$  est le vecteur position et  $\vec{\sigma}$  est le tenseur contrainte. Les ondes générées sont dites longitudinales et transverses, leur vitesse dans la silice est respectivement d'environ 5 km/s et 3 km/s. L'onde transverse est aussi appelée onde de cisaillement et l'onde longitudinale, onde de compression.

Pour calculer les contraintes, l'enjeu est de calculer le vecteur déplacement dû à la dilatation thermique résultante de l'élévation de température. D'après le premier principe de la thermodynamique, la déformation peut se décomposer en une succession de déformations infinitésimales. Pour un corps de volume  $V$  soumis à une pression isotrope  $p$ , la variation infinitésimale du travail des forces de pression par unité de volume est  $\delta w_{ext} = -\frac{p\delta V}{V}$ . Il est possible de montrer que ce travail correspond aux contraintes exercées  $\sigma_{ik}$  pour déformer le corps et  $\delta w_{ext} = \sigma_{ik} \delta \varepsilon_{ik}$  (suivant la notation d'Einstein, la somme est implicite quand les indices se répètent).

En utilisant l'énergie libre interne  $\mathcal{F}$  du solide donné par la loi de Hooke en l'absence de force extérieure, le tenseur contrainte peut s'écrire comme la dérivée de l'énergie libre  $\sigma_{ik} = \left( \frac{\delta \mathcal{F}}{\delta \varepsilon_{ik}} \right)_T$ . Dans le cas d'un changement de température  $T$  et en prenant le développement à l'ordre un, dans l'hypothèse de petites déformations, l'énergie libre est  $\mathcal{F} = \mathcal{F}_0(T) - K\alpha(T - T_0)\varepsilon_u$ . Avec  $K$ ,  $\alpha$ , et  $\varepsilon_u$  sont respectivement le module de compression isotherme, le coefficient de dilatation thermique et la trace du tenseur déformation. La relation qui lie la déformation et le déplacement [92] s'écrit :

$$\varepsilon_{ik} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_k} + \frac{\partial u_k}{\partial x_i} \right) \quad (39)$$

Finalement, en résolvant ces diverses équations et en utilisant la relation d'équilibre  $\frac{\delta \sigma_{ik}}{\delta x_{ik}} = \vec{0}$  (donné en l'absence de force externe et dans le cas quasi statique i.e que l'évolution du déplacement est suffisamment lente pour négliger le terme d'accélération de l'Eq. (38)), le vecteur déplacement  $\vec{u}$  est alors donné par l'équation de Navier pour un gradient de température et un solide isotrope :

$$\frac{3(1-\nu)}{1+\nu} \overrightarrow{\text{grad}}(\text{div}(\vec{u})) - \frac{3(1-2\nu)}{2(1+\nu)} \overrightarrow{\text{rot}}(\overrightarrow{\text{rot}}(\vec{u})) = \overrightarrow{\alpha \text{grad}}(T) \quad (40)$$

Où  $\alpha$  est le coefficient de dilatation thermique et  $\nu$  est le coefficient de Poisson. Lorsque le coefficient de Poisson  $\nu$  est positif (c'est le cas de la silice), il permet de caractériser le fait qu'une élongation longitudinale entraîne un rétrécissement transverse. Dans le cas contraire, lorsque la section s'accroît sous la traction, le coefficient de Poisson est négatif (auxétisme). Les contraintes se calculent en utilisant l'équation d'équilibre (reliant contrainte et déformation) [92]. D'autres modèles plus complets en dehors de la zone linéaire peuvent être utilisés pour calculer les contraintes à partir d'un modèle thermo-élasto-plastique valide jusqu'en zone plastique du matériau [96].

### 2.3. Critère de rupture

Lorsque les contraintes dépassent un seuil admissible pour le matériau, celui-ci se rompt. Il existe plusieurs types de contraintes. Il faut distinguer les contraintes dites de traction qui tendent à séparer les atomes du solide, et les contraintes de compression qui au contraire tendent à comprimer la matière. Lorsque le matériau est simultanément soumis à des contraintes de traction et de compression, des contraintes de cisaillement apparaissent. Ces trois types de contraintes sont illustrés sur la Figure 18. Connaître ces contraintes est important afin de prédire théoriquement si de la fissuration peut apparaître suite à une irradiation laser. C'est pourquoi, dans ce qui suit est présenté à partir des contraintes calculées dans le matériau, comment il est possible de les comparer à des observables expérimentales (seuils de ruptures du matériau) dans le but les prédire.

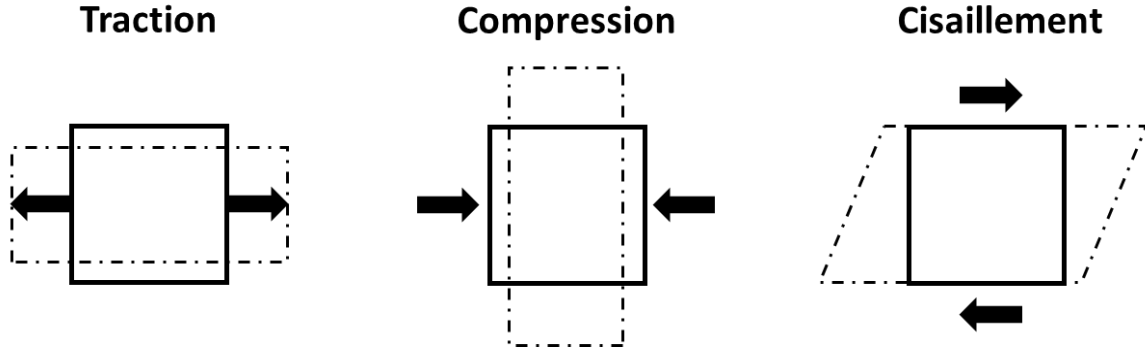


Figure 18. Illustration de la contrainte de compression, de traction et de cisaillement sur un élément de matière d'un solide selon un axe uniquement.

Pour les matériaux mécaniquement dits fragiles, comme les verres et les céramiques, les contraintes maximales supportées en traction et en compression sont différentes par opposition aux autres solides comme les métaux pour lesquels ces deux contraintes maximales sont similaires. Expérimentalement, les contraintes maximales provoquant la rupture sont déterminées en sollicitant le solide par un test de compression ou de traction pure. Les deux limites principales de rupture sont la limite en compression  $L_c$  et la limite en traction  $L_t$ . En comparant les contraintes aux valeurs-limites de traction et de compression admissibles par le matériau, il est donc possible de déterminer lorsqu'une rupture intervient. Cependant, dans les modèles, les contraintes sont calculées dans un repère qui ne permet pas d'observer les contraintes en pures compressions ou pures tractions pour les comparer aux valeurs-limites  $L_c$  et  $L_t$ . Ainsi, en tout point de l'espace, un repère doit être positionné et orienté de manière à maximiser les contraintes en compression et en traction. En Figure 19(a) sont illustrées les composantes du tenseur contraintes  $\bar{\sigma}$  définies par  $\sigma_{xx}$ ,  $\sigma_{yy}$ , et  $\tau_{xy}$  pour des projections sur les deux axes cartésiens. Ils décrivent localement dans un élément de matière (dans le calcul il s'agit d'un élément de maille) les contraintes suivant l'axe x, l'axe y et le cisaillement dans une direction particulière. Il est possible de déterminer un nouveau tenseur où les éléments qui le composent sont projetés dans un nouveau repère ayant une nouvelle direction, comme illustrée dans la Figure 19(b). Le repère est orienté de telle sorte que les composantes  $\sigma_{xx'}$  et  $\sigma_{yy'}$  sont respectivement maximisées et minimisées alors que la contrainte de cisaillement est annulée. Cet angle  $\theta_p$  est donné par l'Eq. (41) et est illustré sur Figure 19(b) [97].

$$\tan(2\theta_p) = \frac{2\tau_{xy}}{\sigma_x - \sigma_y} \quad (41)$$

Mathématiquement, chercher un tenseur comportant une pure traction et une pure compression revient à diagonaliser le tenseur. Le tenseur contrainte initialement calculé dans le repère  $(o, x, y)$  est exprimé dans une nouvelle base  $(o, x', y')$  par l'Eq. (42). Ce nouveau repère est appelé repère principal.

$$\bar{\sigma}_{(o,x,y)} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} \\ \sigma_{yx} & \sigma_{yy} \end{pmatrix} \Rightarrow \bar{\sigma}_{(o,x',y')} = \begin{pmatrix} \sigma_I & 0 \\ 0 & \sigma_{II} \end{pmatrix} \quad (42)$$

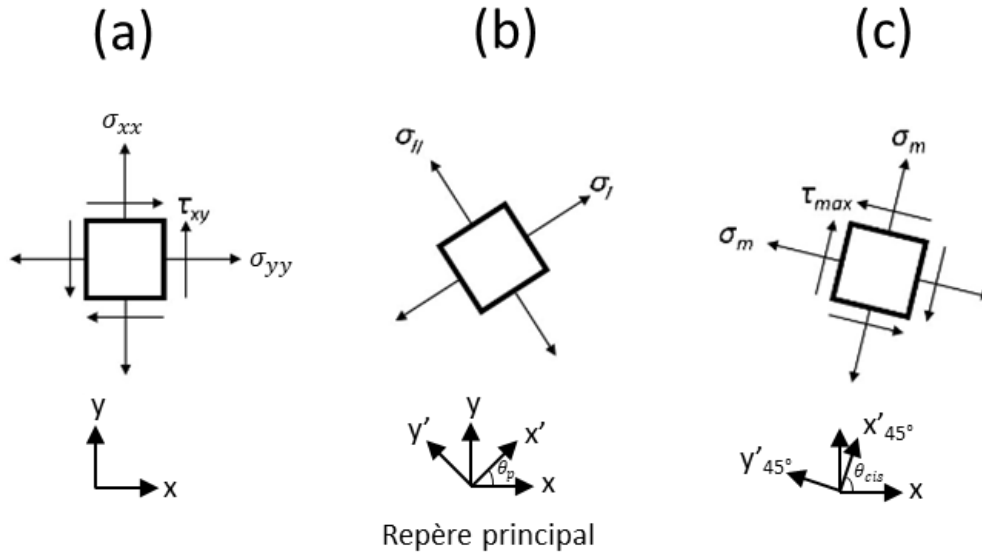


Figure 19. Illustration des états des contraintes, suivant l'orientation du repère [96].

Pour diagonaliser le tenseur il faut résoudre l'équation suivante :

$$\begin{aligned} \bar{\sigma}_{(o,x,y)} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} - \lambda & \sigma_{xy} \\ \sigma_{yx} & \sigma_{yy} - \lambda \end{pmatrix} = 0 &\Leftrightarrow \det(\bar{\sigma} - \lambda I) = 0 \\ &\Leftrightarrow \lambda^2 - \lambda(\sigma_{xx} + \sigma_{yy}) + \sigma_{xx}\sigma_{yy} - \sigma_{xy}\sigma_{yx} = 0 \\ &\Leftrightarrow a\lambda^2 + b\lambda + c = 0 \end{aligned} \quad (43)$$

Avec  $I = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$  la matrice identité,  $a = 1$ ,  $b = -(\sigma_{xx} + \sigma_{yy})$  et  $c = \sigma_{xx}\sigma_{yy} - \sigma_{xy}\sigma_{yx}$ . Les solutions de l'Eq. (43) sont celles d'un polynôme du second degré donné par les relations suivantes :

$$\begin{aligned} \lambda_{1,2} &= \frac{\sigma_{xx} + \sigma_{yy}}{2} \pm \sqrt{\frac{\sigma_{xx}^2 + 2\sigma_{xx}\sigma_{yy} + \sigma_{yy}^2 - 4\sigma_{xx}\sigma_{yy} + 4\sigma_{xy}^2}{4}} \quad , \text{car } \sigma_{xy} = \sigma_{yx} \\ \lambda_{1,2} &= \frac{\sigma_{xx} + \sigma_{yy}}{2} \pm \sqrt{\left(\frac{\sigma_{xx} - \sigma_{yy}}{2}\right)^2 + \sigma_{xy}^2} \end{aligned} \quad (44)$$

Les solutions de l'Eq. (44) donnent les valeurs des contraintes principales dans le repère principal. Il est noté et défini  $\sigma_{max} = \sigma_I$  la contrainte maximale en traction et  $\sigma_{min} = \sigma_{II}$  la contrainte minimale en traction lorsque sa valeur est positive, ou bien la contrainte maximale en compression lorsque sa valeur est négative. Par convention  $\sigma_I > \sigma_{II}$ .  $\sigma_{max} = \sigma_I$  et  $\sigma_{min} = \sigma_{II}$  sont exprimés par :

$$\begin{aligned} \sigma_{max} &= \sigma_I = \sigma_m + R \\ \sigma_{min} &= \sigma_{II} = \sigma_m - R \end{aligned}$$

Avec

$$\sigma_m = \frac{\sigma_{xx} + \sigma_{yy}}{2} \quad (45)$$

et

$$R = \sqrt{\left(\frac{\sigma_{xx} - \sigma_{yy}}{2}\right)^2 + \sigma_{xy}^2}$$

Les contraintes maximales de cisaillement correspondent au repère des contraintes principales avec un angle de  $45^\circ$  ( $\theta_{cis} = \theta_p \pm 45^\circ$ ). On se place alors dans un nouveau référentiel où les contraintes de compression et de traction sont minimales, mais où le cisaillement devient maximal [97]. La contrainte maximale de cisaillement est donnée par la relation suivante et illustrée par la Figure 19(c).

$$\tau_{max} = \frac{\sigma_I - \sigma_{II}}{2} = R \quad (46)$$

Comparer les valeurs maximales des contraintes de compression et de traction obtenues aux valeurs-limites admissibles par le matériau permet de prédire des ruptures. Le critère de Mohr est utilisé pour déterminer les ruptures. Il y aura alors rupture lorsque les contraintes principales maximales atteignent la limite à la traction  $L_t$  :

$$\frac{|\sigma_I|}{L_t} \geq 1 \quad (47)$$

Ou lorsque les contraintes maximales de compression atteignent la limite en compression :

$$\frac{|\sigma_{II}|}{L_c} \geq 1 \quad (48)$$

Pour un élément de matière, lorsque  $\sigma_I$  et  $\sigma_{II}$  sont de signes opposés, cela signifie qu'il y a de la compression en plus de la traction menant à du cisaillement. La rupture est atteinte lorsqu'une des conditions données par les relations suivantes sont vérifiées.

$$\begin{aligned} & \frac{|\sigma_I - \sigma_{II}|}{L_t} \geq 1 \\ \text{Ou} & \frac{|\sigma_I - \sigma_{II}|}{L_c} \geq 1 \end{aligned} \quad (49)$$

Les critères de Mohr permettent de définir la zone au-delà de laquelle la rupture apparaît. Cette zone est indiquée en rouge dans la Figure 20. Lorsque les contraintes principales sont à l'intérieur du périmètre du parallépipède délimité par le trait rouge, les contraintes ne sont pas suffisantes pour initier une rupture. Dans le cas d'une contrainte maximale de cisaillement, la limite est plus faible, car le cisaillement est le processus le plus efficace pour initier des fractures et rompre le matériau dans un matériau fragile tel que le verre. Cette limite est déterminée expérimentalement à environ  $\frac{L_t}{2}$  [98]. Enfin, il est à noter que les limites de ruptures diffèrent pour un même matériau, car la présence de défauts peut fragiliser davantage le matériau et abaisser les critères des seuils en rupture.

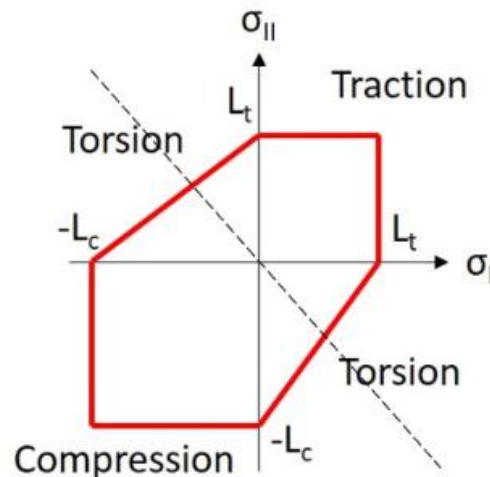


Figure 20. Zone de rupture en rouge selon les critères de Mohr dans l'espace des contraintes principales [97].

### 3. Ablation laser et paramètres d'influences

La nature des modifications du matériau résulte des propriétés du rayonnement et du milieu ambiant durant l'interaction qui est en grande partie régie par la dynamique des électrons durant l'irradiation laser. Les premiers instants de l'interaction laser-matière implique les trois processus suivants : (i) l'excitation des électrons par absorption non linéaire [99] et l'ionisation par impact [18], (ii) chauffage du réseau par couplage électron-phonon, et (iii) diffusion thermique et modifications structurales [19,20]. Ces processus dépendent des caractéristiques de l'impulsion laser en termes d'énergie, de durée d'impulsion, de longueur d'onde, de polarisation, etc. Par conséquent, l'efficacité de l'ablation laser peut être améliorée en optimisant l'absorption de l'énergie, soit en ajustant les paramètres du laser ou/et en effectuant une mise en forme spatiale ou/et temporelle de l'impulsion laser.

Dans la Section 3.1, sont décrits les mécanismes conduisant à l'ablation du matériau suite à l'irradiation laser. L'influence de : la longueur d'onde, la durée d'impulsion, le nombre d'impulsions sur l'ablation est décrit en Section 3.2. La Section 3.3 traite de l'influence du profil d'intensité temporel et de l'irradiation avec deux sous-impulsions de faibles délais sur l'ablation.

#### 3.1. Mécanisme d'ablation

Comme évoqué précédemment, le volume ablaté par l'impulsion laser dans un matériau diélectrique dépend directement de la quantité d'énergie absorbée par les électrons de conduction. Elle est fonction de nombreux paramètres, tels que l'intensité, de la durée d'impulsion, de la longueur d'onde... Lorsque la durée d'impulsion laser est inférieure au temps de couplage électron-phonon, le phénomène d'ablation laser peut résulter de deux phénomènes, l'explosion coulombienne et/ou



l'explosion de phase [100–102], sachant que les deux peuvent coexister. L'explosion coulombienne se produit essentiellement sur les premières couches atomiques en surface du matériau, ce mécanisme est prépondérant pour des impulsions très courtes (quelques dizaines de femtosecondes). Lors de l'irradiation laser, des électrons de conduction sont générés sur l'épaisseur de peau (Figure 14 de la Section 1.4). En surface, les électrons des premières couches atomiques sont éjectés dans l'air. Le déficit de charge entraîne une répulsion coulombienne, et les premières couches atomiques sont éjectées. La profondeur d'ablation résultante est de quelques nanomètres. Dans les couches plus profondes, l'ablation par explosion de phase se produira [102,103]. Contrairement à la surface, les électrons à l'intérieur du diélectrique ne peuvent pas être éjectés par effet photoélectrique. L'énergie déposée aux électrons durant l'irradiation laser sur l'épaisseur de peau donne lieu à une température électronique importante, celle-ci thermalise en une dizaine de picosecondes avec la température ionique (de la matrice). Lorsque la température de la matrice devient supérieure à la température de transition vitreuse, la matière est liquide ou bien vaporisée si la température d'ébullition est atteinte, ce qui entraîne une éjection de matière sous forme de gouttelettes, de morceaux de matière ou de gaz. Les profondeurs d'ablation sont de l'ordre de plusieurs dizaines à plusieurs centaines de nanomètres par impulsion laser pour des impulsions courtes (inférieures à quelques picosecondes). En fonction des paramètres laser, la profondeur d'ablation correspond à l'ordre de grandeur de l'épaisseur de peau calculé par l'Eq. (33) en considérant que la majorité de l'énergie laser est absorbée sur celle-ci [19].

D'un point de vue modélisation, il existe deux critères permettant d'estimer les zones d'ablation prédites. Ces deux observables sont la densité électronique critique et la densité d'énergie absorbée.

- Densité électronique critique : en régime subpicoseconde, de nombreux auteurs utilisent le critère de la densité électronique critique calculée dans l'Eq. (24) [58,104–106]. Lorsque la densité électronique critique est atteinte, le matériau devient très absorbant menant à une modification irréversible jusqu'à l'ablation.
- Densité d'énergie absorbée : d'autres auteurs utilisent le calcul de l'énergie absorbée par le matériau. Lorsque celle-ci atteint une valeur donnant lieu à la température de fusion ou d'ébullition du matériau, alors l'ablation se produit [61,71,107–109].

Pour la silice, lorsque le critère d'ablation est choisi en utilisant la densité d'énergie absorbée, le seuil en intensité ou en fluence obtenue est du même ordre de grandeur mais légèrement supérieur comparé au critère de la densité électronique critique [108].

### **3.2. Influence des paramètres laser sur l'ablation**

#### **Influence de la durée impulsion et de la longueur d'onde sur le seuil en ablation.**

Un grand nombre d'études expérimentales et théoriques ont été réalisées pour déterminer les mécanismes d'endommagement ou d'ablation en fonction de la durée d'impulsion. La Figure 21 montre l'évolution du seuil d'ablation en fluence en fonction de la durée d'impulsion et de la longueur d'onde pour la silice fondue [56,110,111]. Deux régimes sont observables. Un premier régime lorsque la durée d'impulsion est supérieure au temps de thermalisation électron-phonon. Les électrons ont eu le temps de thermaliser avec la matrice et la diffusion thermique commence à opérer. La zone d'ablation s'étend au-delà de la zone d'interaction initiale et donne lieu à une détérioration de la qualité d'usinage au fur et à mesure que la durée d'impulsion augmente. Dans le deuxième régime qui

concerne des durées d'impulsions inférieures à **10-20 ps**, les courbes s'écartent de la loi, pour lesquelles la thermalisation entre les températures électronique et ionique n'est pas achevée. La diffusion thermique dans le réseau n'a donc pas commencé ou partiellement, cela explique en outre que la zone de dommage (matière fondue, ablation) est limitée à la zone d'interaction pour ces durées d'impulsions. Pour une durée d'impulsion plus courte et à énergie égale, l'intensité crête est plus importante. L'ionisation non linéaire est très présente et d'autant plus forte que l'ordre multiphonique est faible, c'est-à-dire que la longueur d'onde est courte, expliquant un seuil en fluence plus bas pour une longueur d'onde plus faible pour une même durée d'impulsion (Figure 21).

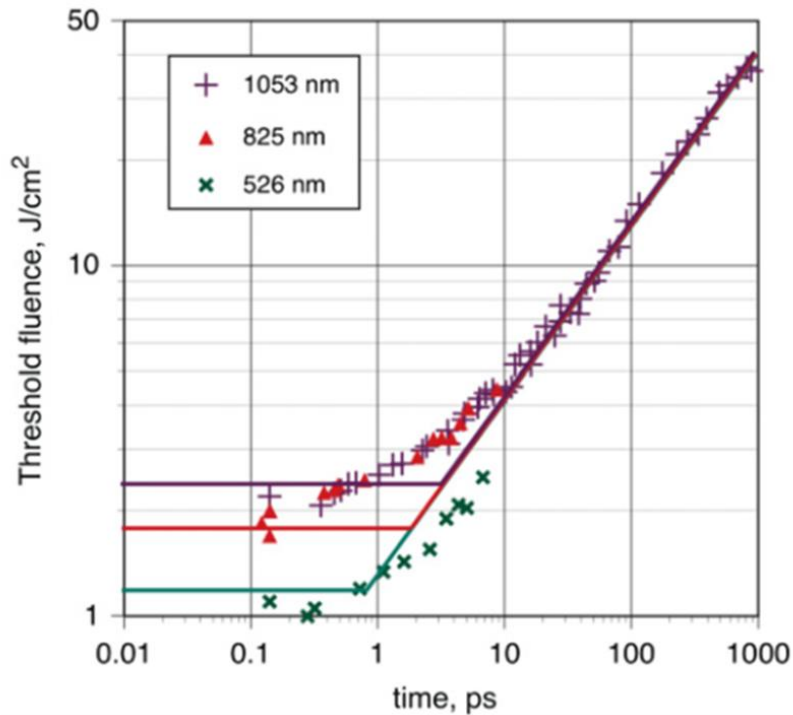


Figure 21. Seuil d'ablation en fluence pour la silice fondue pour différentes durées d'impulsions de différentes longueurs d'onde : 1053 nm (croix violettes) ; 825 nm (triangles rouges) ; 526 nm (croix vertes) [56,110,111].

Il est bien établi pour des durées d'impulsion supérieures à **10-20 ps** que le seuil d'ablation en fluence dépend de la durée de l'impulsion [56,58,111-113]. Il est possible de déterminer pour une durée d'impulsion  $\tau$  supérieure à **10-20 ps** que le seuil d'ablation en fluence suit une loi d'échelle en  $\tau^{-\frac{1}{2}}$ , ce seuil est lié à la diffusion thermique.

Il est aussi démontré que les seuils d'ablation mono ou multi-impulsions diffèrent [101]. Cela suggère que les premiers tirs laser (sans accumulation thermique) induisent une grande concentration de défauts dans le réseau de la matière qui modifie les interactions des impulsions suivantes. Les dommages peuvent également être dus à la génération et à l'accumulation de défauts intrinsèques tels que les excitons autopiégés dont leur temps de demi-vie atteint  $10^{-11}$ - $10^{-12}$  seconde pour la silice [70]. Ils peuvent donc servir d'intermédiaire lors d'une prochaine excitation, ce qui favorisera une nouvelle ionisation par laser. Pour une fréquence de répétition laser élevée, le phénomène d'accumulation thermique est favorable à l'ablation, car l'énergie à apporter pour atteindre le

changement de phase à l'impulsion  $n + 1$  est plus faible par rapport à la température ambiante. Les premières impulsions modifient donc la matière vue par les impulsions suivantes.

### Influence de la durée impulsion en régime d'ablation

La durée d'impulsion a une influence significative sur les volumes ablatés. La Figure 22 représente des volumes ablatés dans la silice en fonction de la fluence pour des durées d'impulsions comprises entre 0 et 300 fs à une longueur d'onde de 800 nm et d'une durée de 450 fs à 1025 nm [114,115]. Quelle que soit la durée d'impulsion, le volume ablaté augmente avec la fluence. À densité d'énergie égale, le seuil d'ablation est plus faible lorsque la durée d'impulsion diminue. À fluence égale et pour des fluences inférieures à 15 J/cm<sup>2</sup> le volume ablaté diminue avec la durée d'impulsion croissante.

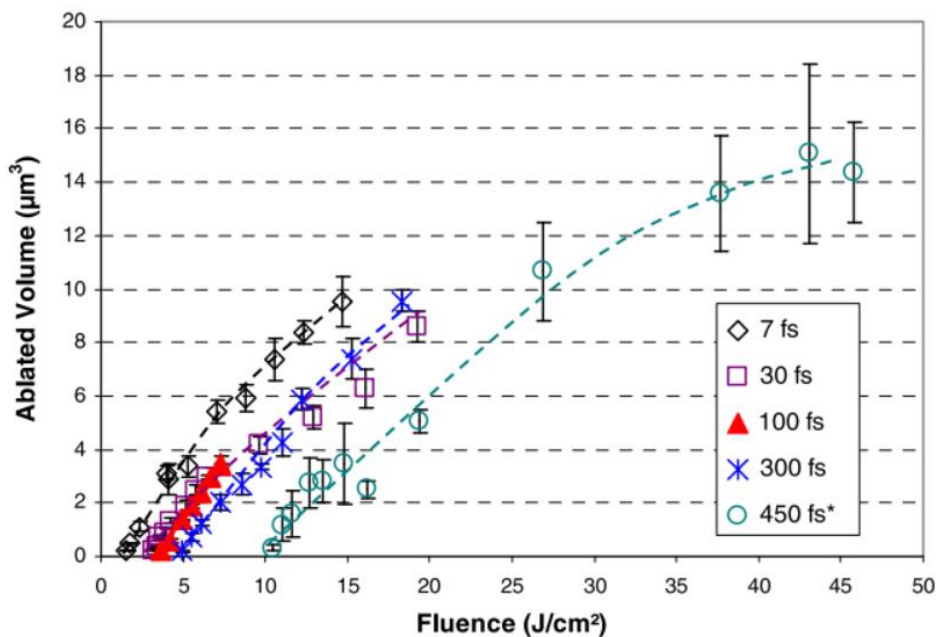


Figure 22. Volume ablaté dans la silice en fonction de la fluence pour différentes durées d'impulsions. Les tests ont été réalisés à 800 nm pour des durées de 7, 30, 100 et 300 fs. Puis à 1025 nm pour une durée d'impulsion de 450 fs [114,115].

### Diamètre du cratère

Pour une énergie répartie spatialement suivant une gaussienne et jusqu'à quelques fois le seuil d'ablation en énergie, le diamètre des cratères d'ablation suit l'évolution suivante :

$$D^2 = 2W_o^2 \ln\left(\frac{E}{E_{th}}\right) \quad (50)$$

Avec  $E_{th}$  l'énergie seuil d'ablation,  $E$  l'énergie laser,  $W_o$  le *waist* laser (rayon) et  $D$  le diamètre du cratère mesuré. Lorsque l'énergie est trop importante (supérieure à  $4 E_{th}$  en régime femtoseconde), une déviation de la loi est observée due à l'ionisation de l'air associé souvent à de l'effet Kerr, modifiant la propagation du faisceau laser et introduisant une défocalisation du *waist* [114-116].

### Profondeur du cratère.

Quel que soit le matériau diélectrique utilisé, une saturation de la profondeur d'ablation apparaît avec l'augmentation de la fluence. Sur la Figure 23, la profondeur d'ablation est représentée en fonction de la fluence pour du quartz et du saphir [117–119]. Bien que les seuils d'ablation en fluence diffèrent, ces deux matériaux présentent une saturation de la profondeur d'ablation lorsque la fluence dépasse deux à trois fois les valeurs du seuil d'ablation en fluence.

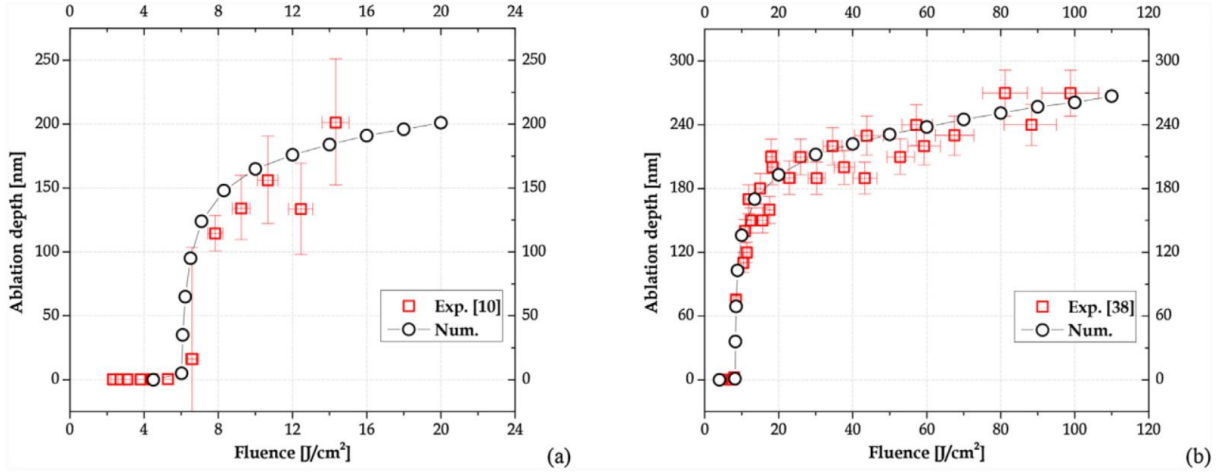


Figure 23. Profondeur d'ablation pour du quartz à 800 nm et 120 fs en (a) à gauche et du saphir à 795 nm et 160 fs en (b) à droite [117–119].

Une loi semi-empirique [120,121] permet d'évaluer la profondeur d'ablation :

$$d = \frac{1}{\alpha} \ln \left( \frac{F}{F_{th}} \right) \quad (51)$$

Avec  $\alpha$  le coefficient d'absorption,  $F$  la fluence et  $F_{th}$  la fluence seuil. Cependant, le paramètre  $\alpha$  de l'Eq. (51), analogue à un coefficient d'absorption, est un paramètre fixe qui ne tient pas compte de la variation dynamique du coefficient d'absorption tout au long de l'interaction laser-matière. Ce paramètre dépend de la longueur d'onde et de la densité électronique, laquelle dépend de nombreux paramètres tels que la longueur d'onde, la durée d'impulsion, la fréquence de collision électronique, de la bande interdite, etc. Le coefficient d'absorption hérite donc de ces paramètres. Une valeur fixe est souvent prise pour le coefficient d'absorption permettant de décrire au mieux les résultats expérimentaux.

Le lien entre profondeur d'ablation et durée d'impulsion a également été étudié. La Figure 24 montre l'évolution de la profondeur d'ablation et de l'efficacité d'ablation en fonction de la durée d'impulsion dans la silice pour diverses valeurs de fluences. Quelle que soit la fluence utilisée, la profondeur ablatée augmente avec la durée d'impulsion vers une valeur optimale. Lorsque la durée d'impulsion augmente davantage, la profondeur d'ablation chute rapidement. Plus la durée d'impulsion est importante, plus la fluence nécessaire pour atteindre le maximum de profondeur d'ablation augmente. Les courtes durées d'impulsion favorisent à fluence égale une ablation plus profonde. D'autres expériences menées dans du verre borosilicate [120] montrent pour une longueur

d'onde de 780 nm et une durée d'impulsion variable entre 40 - 800 fs à une fluence de  $6,7 \text{ J/cm}^2$  que la profondeur d'ablation atteint un maximum pour une durée d'impulsion de 240 fs, puis celle-ci décroît ensuite lorsque la durée d'impulsion augmente.

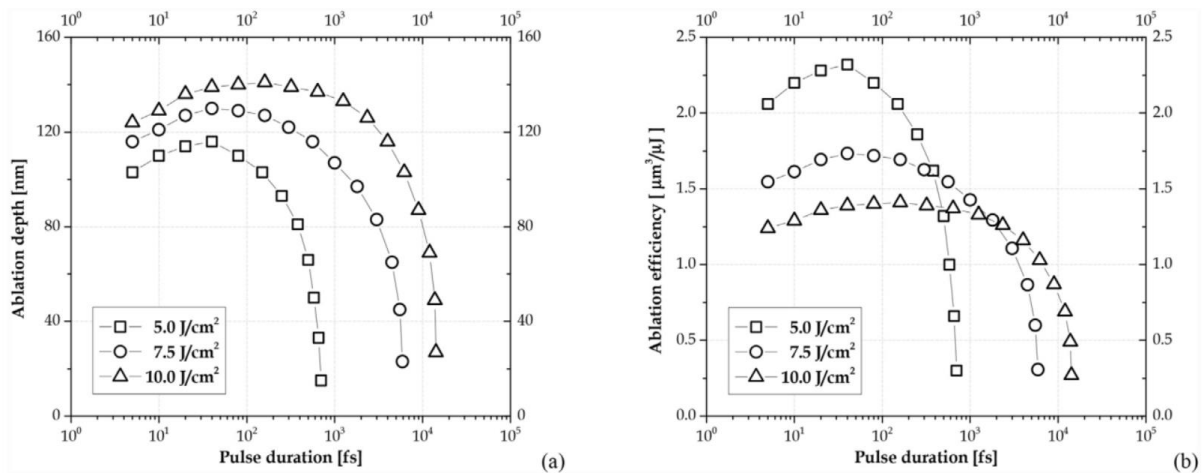


Figure 24. Profondeur d'ablation et efficacité d'ablation en fonction de la durée d'impulsion respectivement à gauche et à droite dans la silice [119].

Utéza *et al.* [114,115] ont montré dans la silice fondue qu'il était possible d'ajuster le diamètre du cratère en fonction du rapport  $F/F_{th}$  indépendamment de la durée d'impulsion. Pour une fluence supérieure à  $2F/F_{th}$ , la profondeur d'ablation est ajustable en fonction de la durée d'impulsion. Lorsque la fluence atteint plusieurs fois la fluence seuil des microfissures ou/et des effets thermiques peuvent apparaître avec notamment des bourrelets autour du cratère d'ablation [109], dégradant la qualité d'usinage. Finalement, il est à noter que l'ensemble des paramètres laser tels que la longueur d'onde, la durée d'impulsion et la nature du matériau (bande interdite), mais aussi les conditions de focalisation tel que l'ouverture numérique [119] jouent un rôle sur les volumes ablatés et plus précisément sur le diamètre et la profondeur d'ablation des cratères.

L'étude de l'influence de la longueur d'onde sur le volume ablaté est presque inexistante. Une des rares études a été menée par Hernandez-Rueda *et al.* [122] pour la fabrication de guide d'onde à des longueurs d'onde de 400, 800, 1100 et 1200 nm avec une durée d'impulsion de 200 fs. Ils montrent dans des simulations qu'une même densité électronique ( $10^{21} \text{ cm}^{-3}$ ) est atteinte pour de plus faibles intensités avec des courtes longueurs d'onde (réalisées avec le modèle de Keldysh pour la photoionisation et le modèle MRE pour l'ionisation par impact). La densité électronique en bande de conduction pour les courtes longueurs d'onde provient majoritairement de la photoionisation alors que pour les grandes longueurs d'onde celle-ci provient essentiellement de l'ionisation par impact. Expérimentalement, l'utilisation d'une longueur d'onde plus courte permet un dépôt et un marquage plus localisé avec un diamètre plus fin et un rapport supérieur à deux entre les courtes et les grandes longueurs d'onde.

### Accumulation d'impulsions

Dans de nombreux verres (silice fondue, borosilicate, sodalime) il a été montré que la profondeur d'ablation évolue linéairement (après quelques impulsions) avec le nombre d'impulsion jusqu'à environ  $35 \mu\text{m}$  de profondeur sans aucun redépôt en profondeur [123,124]. Cette observation est valable en

l'absence d'accumulation thermique. Tandis que le diamètre du cratère formé par  $N$  impulsions se stabilise après quelques dizaines d'impulsions laser. Les essais ont été réalisés pour des taux de répétition de quelques Hertz (pour lesquelles il n'y a pas d'accumulation thermique) et pour des fluences proches des fluences d'ablation. La longueur d'onde utilisée est de **620 nm** pour une durée d'impulsion de **300 fs**. Aucun dommage thermique ou mécanique n'a été détecté en surface ou en volume lors de ces expériences pour les conditions laser utilisées.

### 3.3. Mise en forme temporelle

Si l'ablation peut être optimisée en jouant sur les paramètres intrinsèques d'une impulsion laser, la mise en forme spatiale et temporelle semble offrir également des perspectives intéressantes dans le but d'optimiser l'énergie laser déposée et d'augmenter le volume ablaté par impulsion. En effet, l'ablation qui résulte de la densité d'énergie absorbée par le matériau est régie comme évoqué précédemment par la dynamique électronique durant l'irradiation laser. De ce fait, moduler l'enveloppe temporelle, utiliser des impulsions de durée différentes et des longueurs d'onde différentes devraient permettre d'impliquer plus ou moins les différents processus à l'oeuvre durant l'excitation électronique et d'optimiser l'énergie déposée. Les approches de mise en forme des impulsions temporelles et spatiales ont été largement rapportées dans la littérature scientifique. Par exemple, l'utilisation d'un faisceau de Bessel permet un dépôt d'énergie allongé et étroit [19–23], ce qui s'avère favorable aux procédés de découpe laser des matériaux transparents. La mise en forme temporelle d'impulsions permet de contrôler la dynamique des électrons [24–26] impliqués dans la modification structurale du matériau. La mise en forme spatiale et temporelle des impulsions peut également être utilisée simultanément, comme par exemple en utilisant un faisceau de Bessel avec une rafale d'impulsions (*burst en anglais*) [26,129]. La présente section regroupe plusieurs techniques de mise en forme temporelle permettant d'agir sur les mécanismes ayant une action sur la dynamique électronique. Des résultats d'expériences et de simulations mono et double longueur d'onde y sont rapportés.

#### Techniques pour la mise en forme temporelle d'impulsion laser

Il n'existe pas de dispositif électronique suffisamment rapide pour modifier le champ électrique laser. En revanche les domaines temporel et fréquentiel sont liés via la transformée de Fourier. Une partie des techniques utilisées pour la mise en forme temporelle repose sur la modification de l'espace fréquentiel de l'impulsion laser. Il existe plusieurs outils permettant de mettre en forme temporellement une impulsion laser, Monmayrant *et al.* [130] décrivent l'ensemble de ces dispositifs utilisés pour la mise en forme (miroir déformable, modulateur de phase type SLM (*Spatial Light Modulator en anglais*), masque de phase, modulateur acousto-optique (AOM, *pour Acousto Optic Modulator en anglais*) avec des avantages et des inconvénients. La mise en forme temporelle par SLM est rapidement décrite dans la Figure 25. Dans un premier temps, l'impulsion est décompressée par un réseau, les fréquences qui la constituent sont dispersées spatialement, puis une lentille recollimate le faisceau. Les différentes composantes spectrales sont ainsi modulables individuellement. Le SLM constitué d'un réseau de cristaux liquides (pixel de cristaux) permet en appliquant des tensions aux différents pixels de moduler l'indice de réfraction. Un retard relatif entre les différentes fréquences dispersées peut ainsi être appliqué individuellement. Ensuite, lorsque l'impulsion est recompressée par

une lentille et un réseau, en vertu de la transformée de Fourier, les changements de phase spectrale donnent lieu à des profils temporels d'impulsions modulées.

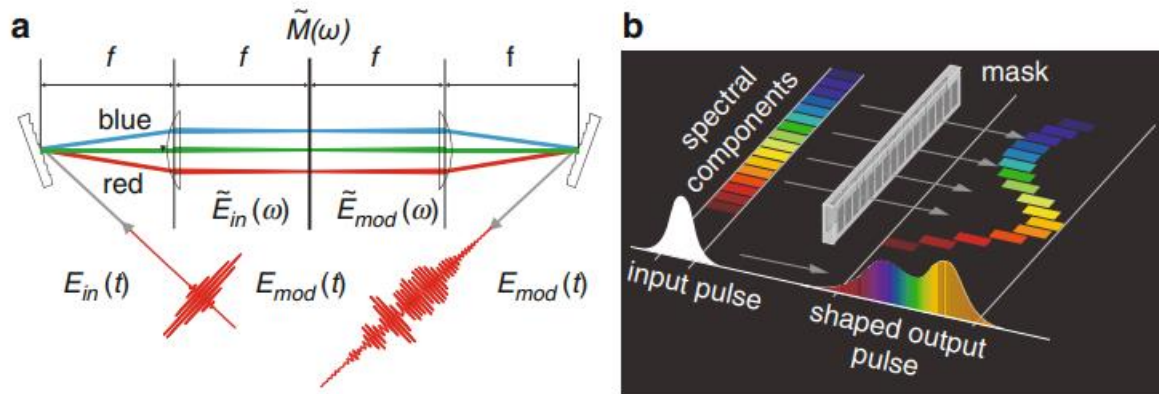


Figure 25. Mise en forme temporelle, basée sur la transformée de Fourier pour une impulsion femtoseconde en (a). Le SLM doit être placé dans le plan de Fourier des deux lentilles. Le montage est appelé montage 4f. En (b) est représentée une illustration de la mise en forme du profil temporel d'une impulsion laser ultra-courte par retardement spectral [131].

Avec ces dispositifs (SLM, AOM...), la forme temporelle de l'impulsion laser peut être adaptée aux besoins de l'application. Cependant, de tels dispositifs sont coûteux (plusieurs dizaines de milliers d'euros). Souvent d'autres dispositifs sont utilisés comme la ligne à retard. Celle-ci ne permet pas de structurer à souhait la forme temporelle de l'impulsion laser, mais elle permet en jouant sur le délai entre les deux impulsions de moduler la forme temporelle dans le recouvrement.

### Mise en forme temporelle en configuration mono longueur d'onde

Plusieurs expériences et simulations ont été réalisées avec un SLM dans le but de contrôler la forme des cratères d'ablation, le volume dans lequel se fait le dépôt d'énergie, la modification d'indice ou d'optimiser le débit matière dans les diélectriques [25,26,132–135]. Stoian *et al.* [25] ont réalisé des tests dans le saphir et la silice avec des durées d'impulsions de 90 fs et une longueur d'onde de 800 nm. Le dispositif SLM permet de diviser l'impulsion incidente en une, deux ou trois sous-impulsions avec un délai et une répartition énergétique variable. Le délai entre les sous-impulsions varie entre 0,2 et 1 ps. Les tests sont réalisés au seuil d'ablation et en régime d'ablation. Les résultats montrent à énergie totale égale, qu'une répartition de l'énergie entre deux ou trois impulsions augmente le seuil de claquage optique quel que soit le délai, car le fait de répartir l'énergie de l'impulsion incidente en plusieurs sous-impulsions permet de diminuer l'intensité et de réduire ainsi les effets non-linéaires. En régime d'ablation, les cratères sont moins profonds et moins larges. Hernandez-Rueda *et al.* [26,135] ont réalisé des essais au SLM pour des formes d'impulsions asymétriques dans de la silice fondue avec des impulsions de 100 fs et 800 nm. La Figure 26 [135] montre des profils de cratère d'ablation réalisées pour différents formes d'impulsion et pour des délais variant de 100 à 500 fs. Les résultats montrent qu'un cratère d'ablation deux fois plus profond est obtenu pour une durée d'impulsion de 100 fs pour une impulsion unique, comparé à une impulsion de 500 fs. Puis quelle que soit la modulation temporelle ou le délai utilisé, la profondeur d'ablation chute lorsque le délai augmente. Cependant, les cratères obtenus sont plus larges lorsqu'une mise en



forme temporelle est utilisée. Ces résultats suggèrent pour la fluence utilisée, qu'une intensité crête élevée (c'est le cas à 100 fs) permet de générer suffisamment d'électrons libres par le processus de photoionisation pour ablater efficacement le matériau. En revanche, les impulsions de 500 fs ne génèrent pas une population initiale de porteurs libres suffisants par photoionisation pour que l'ionisation par impact génère efficacement des électrons libres. Selon Hernandez-Ruela *et al.* [26] et Gedvilas *et al.* [31], la distribution de l'énergie entre les impulsions a une influence significative sur le volume d'ablaté. Des modélisations ont également été réalisées pour des mises en forme temporelles avec des formes symétriques et dysymétriques de l'impulsion laser [136] dans l'UV à 405 nm à 60 fs. Les résultats des simulations sont très similaires et donnent les mêmes ordres de grandeur sur le calcul de l'énergie moyenne acquise par les électrons. Tandis que la densité électronique varie d'un ordre de grandeur.

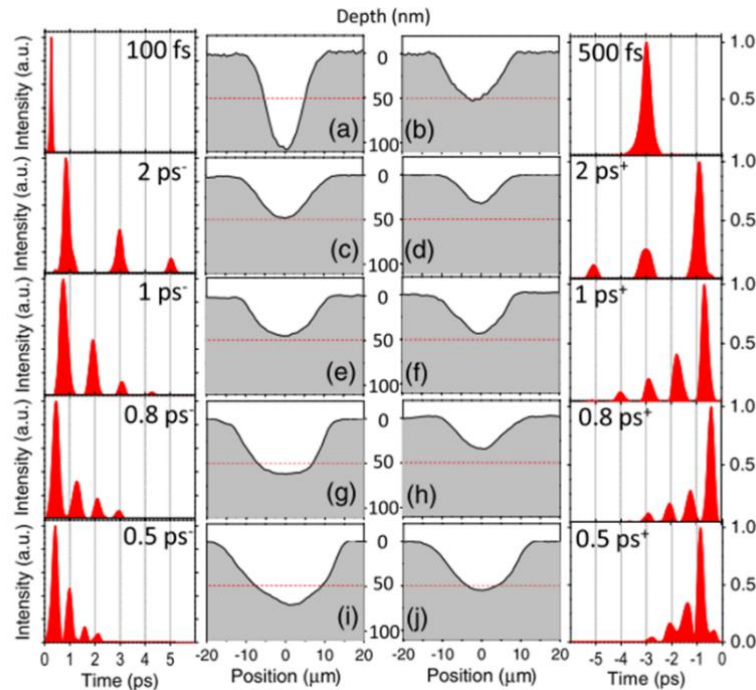


Figure 26. Profil de cratère d'ablation dans de la silice fondue pour une fluence totale de  $6,0 \pm 0,5 \text{ J/cm}^2$  pour différentes mise en forme temporelle de l'impulsion laser. La ligne horizontale rouge sur les profils marque la profondeur de 50 nm [135].

L'irradiation laser femtoseconde à double impulsion dans des matériaux diélectriques a également été étudiée avec des lignes à retard dans le but de contrôler plus efficacement les processus impliqués dans la dynamique électronique. Des expériences ont été rapportées dans la silice fondue [25–30], le saphir [25,30] et le verre borosilicate [29]. La plupart des articles mentionnent un effet sur l'ablation [25–29] et le seuil de claquage optique [29] lié à la deuxième impulsion pour un court délai entre deux impulsions (de 0 à 600 fs). La valeur exacte du délai optimum varie selon les auteurs. Chowdhury *et al.* [30,137] présentent des expériences réalisées dans du saphir et de la silice irradiée avec des impulsions de 90 fs à 800 nm en surface. Les tests montrent un maximum d'ablation pour un délai nul entre les deux impulsions. D'autres auteurs [29] montrent une diminution du seuil de claquage pour un délai inférieur à 200 fs et une efficacité à l'utilisation de la double impulsion dans la silice et du verre borosilicate. Un délai optimum est trouvé entre 200 et 300 fs pour des impulsions



de 40 fs à 800 nm dans du Silicium [27]. Zhao *et al.* [138] montrent que pour des impulsions de 100 fs à 800 nm une profondeur d'ablation plus importante est obtenue en impulsion unique comparée à deux impulsions à 7 J/cm<sup>2</sup>. Dans la silice, de récentes expériences et simulations ont été menées par Zhou *et al.* [139] pour une longueur d'onde de 1030 nm et une durée d'impulsion de 167 fs. L'expérience montre qu'un délai nul conduit à des diamètres et des profondeurs de cratères les plus importants quel que soit le délai entre -1 et 1 ps. Dans ces travaux, les simulations réalisées confirment le fait que le délai nul est l'optimum (avec un modèle intégrant la contribution des STE).

L'effet de la double impulsion sur le dépôt d'énergie, le seuil d'ablation et l'efficacité d'ablation ne fait donc pas consensus dans la littérature scientifique. Cet état de fait résulte à la fois de la diversité des paramètres laser et des matériaux utilisés mais aussi de l'interprétation des résultats. En effet, plusieurs auteurs basent leur analyse en ne considérant que l'énergie de la seconde impulsion. Le Tableau 3 regroupe des expériences et simulations réalisées dans la mise en forme temporelle en configuration mono longueur d'onde. D'autres travaux soulignent un effet avec une longueur d'onde différente pour les deux impulsions.

### **Mise en forme temporelle en configuration bi-longueur d'onde**

Comme précédemment décrit, la mise en forme temporelle et l'utilisation de deux longueurs d'onde permet de cibler plus précisément les mécanismes impliqués dans la dynamique électronique. Une longueur d'onde plus courte (vert ou UV) favorise la photoionisation alors qu'une longueur d'onde dans l'infrarouge améliore le chauffage électronique et l'ionisation par impact. Les tests réalisés pour différentes longueurs d'onde ne peuvent être réalisés avec un seul SLM. Un SLM est nécessaire pour chaque impulsion de couleurs différentes. Les dispositifs de mise en forme du profil temporel d'une impulsion laser ultra-courte par retardement spectral étant coûteux, tous les travaux rapportés dans la littérature ont été réalisés avec une ligne à retard. Les études réalisées sont des simulations et des expériences concernant la modification d'indice, la texturation et l'ablation des diélectriques [31,49,140–151].

Yuan *et al.* [141] ont mené des études dans la silice pour des longueurs d'onde de 400 et 800 nm. La durée des impulsions est de 50 fs, le délai est fixé à 50 fs. La fluence est partagée équitablement entre les deux impulsions, le diamètre respectif des faisceaux n'est pas communiqué. La fluence totale des impulsions est de 5 J/cm<sup>2</sup>. Les cratères d'ablations obtenues sont représentés sur la Figure 27 [141]. Pour une impulsion de 400 nm suivie de celle à 800 nm, la profondeur et le diamètre du cratère formé est plus important comparé aux autres configurations (800 nm + 400 nm ou 800 nm + 800 nm). Cependant, une comparaison uniquement basée sur la longueur d'onde est réalisée et les résultats ne sont pas comparés aux cratères formés par une impulsion unique à 400 nm ou 800 nm d'une fluence de 5 J/cm<sup>2</sup>. L'étude montre donc que lorsque deux impulsions sont utilisées pour irradier la silice, il est préférable d'utiliser la configuration 400 + 800 nm, mais elle ne renseigne pas s'il est préférable d'utiliser une impulsion unique ou deux impulsions. Cependant, l'expérience montre une synergie entre les deux impulsions, le délai positif est la solution la plus efficace pour maximiser le profil d'ablation (profondeur et diamètre) et il confirme qu'il faut créer des électrons libres puis les chauffer avec la deuxième impulsion.

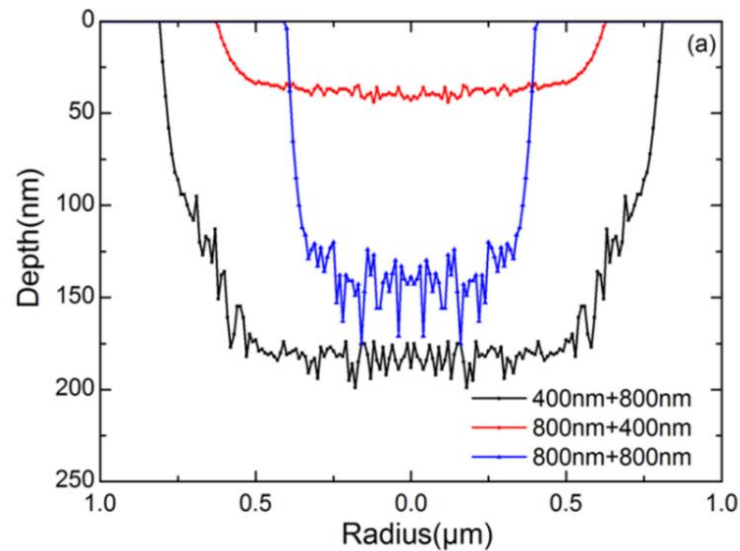


Figure 27. Cratère d'ablation pour une fluence totale de  $5 \text{ J/cm}^2$  pour deux d'impulsions de longueur d'onde respective :  $400 + 800 \text{ nm}$ ,  $800 + 400 \text{ nm}$  et  $800 + 800 \text{ nm}$  [141].

Chowdhury *et al.* [144] ont réalisé des études d'ablation dans la silice pour deux impulsions de  $132 \text{ fs}$  à  $400 \text{ nm}$  et  $90 \text{ fs}$  à  $800 \text{ nm}$ . Les deux impulsions ont un diamètre sur cible de  $4 \text{ μm}$ . La Figure 28 montre le volume ablaté et la transmission optique en fonction du délai entre une impulsion de  $400 \text{ nm}$  d'énergie  $0,4 \text{ μJ}$  et une impulsion de  $800 \text{ nm}$  d'une énergie de  $0,4 \text{ μJ}$  pour un délai variant de  $-1$  à  $100 \text{ ps}$ . Les résultats montrent un maximum d'ablation pour un délai nul, puis après  $300 \text{ fs}$  de délai, le volume ablaté chute. L'étude permet ici de conclure sur le délai optimum à choisir dans une configuration à deux impulsions de deux longueurs d'onde différentes, mais elle ne révèle pas les différences entre deux sous-impulsions et une impulsion unique de même densité d'énergie. Dans ces expériences, la dissymétrie des courbes aux délais positifs et négatifs montre que la solution la plus efficace est de générer des électrons libres de préférence avec une plus faible longueur d'onde, puis de les chauffer avec la deuxième impulsion de plus grande longueur d'onde.

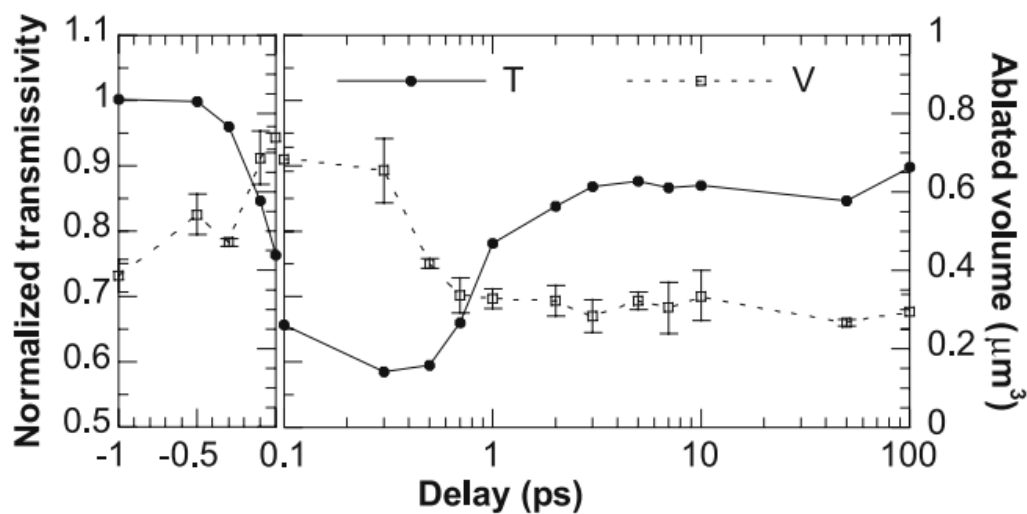


Figure 28. Volume ablaté et la transmission optique en fonction du délai entre une impulsion de  $400 \text{ nm}$  d'énergie  $0,4 \text{ μJ}$  et une impulsion de  $800 \text{ nm}$  d'une énergie de  $0,4 \text{ μJ}$  [144].

Des expériences ont été menées par Gedvilas *et al.* [31] dans du saphir avec deux sous-impulsions, l'une de longueur d'onde 355 nm et l'autre à 1030 nm. La durée d'impulsions est de 10 ps pour les deux sous-impulsions avec un délai fixé à 100 ps. Différents ratios d'énergie entre les sous-impulsions sont explorés afin de définir le ratio optimal en énergie entre l'impulsion UV et infrarouge. Un critère se basant sur la surface modifiée en  $\mu\text{m}^2$  après l'irradiation est utilisé pour comparer les résultats. Les résultats montrent une surface de modification environ 2,5 fois plus importante lorsque l'impulsion UV contient 1/10 de l'énergie de l'impulsion infrarouge. Des expériences comparatives en impulsion UV unique pour une densité d'énergie équivalente ne sont malheureusement pas présentées.

Théberge *et al.* [143] ont utilisé des impulsions différentes en longueur d'onde et en durée d'impulsion. Les expériences ont été réalisées dans la silice fondue et le quartz pour des impulsions de 180 fs à 800 nm focalisées sur 20  $\mu\text{m}$  et 15 ns à 532 nm focalisées sur 300  $\mu\text{m}$ . Les délais entre les deux impulsions varient de -100 à 100 ns. La Figure 29 montre le volume ablaté en fonction du délai entre l'impulsion femtoseconde et nanoseconde dans la silice fondue. Un optimum d'ablation est observé lorsque l'impulsion femtoseconde arrive 30 ns avant l'impulsion nanoseconde. Par rapport aux longs délais, l'optimum à 30 ns représente un gain d'environ deux sur le volume ablaté avec une profondeur d'ablation augmentée de 100%. Quelle que soit la configuration utilisée dans les expériences, les cratères présentent des zones surfondues et des fissures. Une comparaison du volume ablaté entre une impulsion unique et une double impulsion présentant les mêmes caractéristiques en fluence n'a pas été réalisée. L'étude révèle donc encore une fois le délai optimum à utiliser pour l'irradiation à deux impulsions de durée et couleur différente pour maximiser les débits matière, mais ne permet pas de déterminer le procédé le plus efficace entre une impulsion unique et deux sous-impulsions à densité d'énergie égale. Cependant, une synergie entre les deux impulsions est une nouvelle fois observée puisque la génération d'électrons libres par l'impulsion femtoseconde semble favoriser une ionisation significative par bremsstrahlung inverse pour l'impulsion nanoseconde.

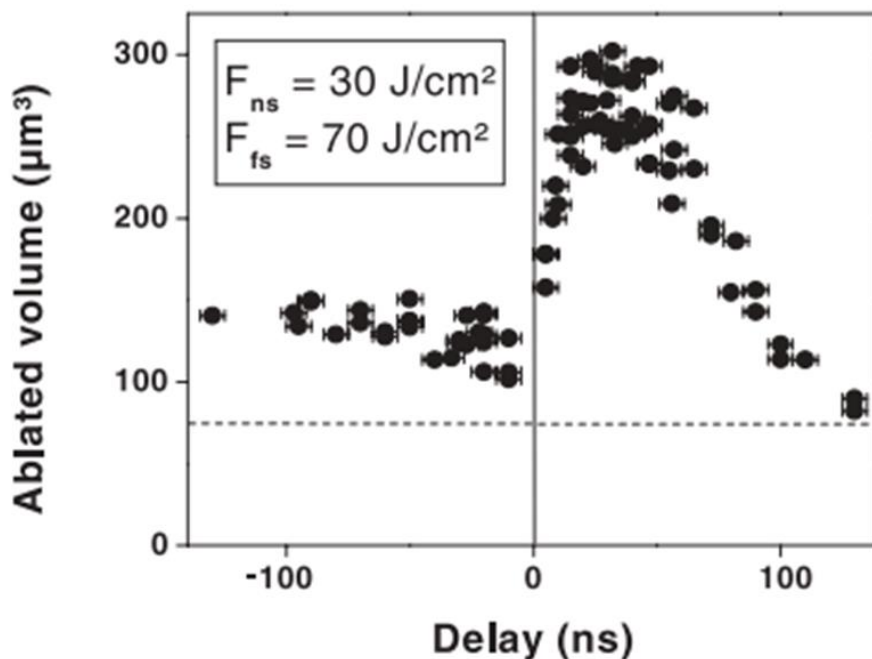


Figure 29. Volume ablaté en fonction du délai pour une énergie fixée entre les deux impulsions de 70 J/cm<sup>2</sup> et 30 J/cm<sup>2</sup> respectivement pour l'impulsion femtoseconde et nanoseconde [143].

Yu *et al.* [140] ont réalisé aussi des expériences dans la silice fondue avec deux sous-impulsions 70 fs à 266 nm focalisée sur 9,2  $\mu\text{m}$  et 60 fs à 800 nm focalisée sur 25,4  $\mu\text{m}$ . Les tests sont réalisés au seuil d'ablation pour différents délais entre  $-600$  à  $+600$  fs. Le délai nul est le délai optimum permettant de réduire le seuil de dommage en fluence. Des expériences comparatives en impulsion unique présentant des densités d'énergie comparables n'ont également pas été réalisées.

Guizard *et al.* [142,148] ont mené des expériences pompe-pompe avec sonde avec des impulsions de 50 fs à 400 nm , 50 fs à 800 nm et 10 ps à 800 nm dans du saphir et de la silice fondue. L'expérience consiste à mesurer le déphasage produit par les porteurs libres durant et après irradiation laser. L'expérience montre pour un délai de 5 ps entre l'irradiation à 50 fs à 400 nm et 10 ps à 800 nm un déphasage identique comparé à l'irradiation avec 50 fs à 400 nm suggérant une densité de porteurs libres identique. La double impulsion semble favoriser dans ce cas la recombinaison électronique, puisque les électrons recombinent plus rapidement. Alors que pour un délai de 5 ps entre l'irradiation à 50 fs à 400 nm et 50 fs à 800 nm, le déphasage est plus important comparé à l'irradiation à 50 fs à 800 nm, suggérant une densité de porteurs libres plus importants (pour la configuration 50 fs à 400 nm). D'autres études menées pour des longueurs d'onde entre 1  $\mu\text{m}$  et 5  $\mu\text{m}$  mentionnent un chauffage et un dépôt d'énergie plus important pour des impulsions de 100 fs comparés à 400 fs [150].

Le Tableau 4 regroupe quelques études expérimentales et des simulations menées sur la mise en forme temporelle en bi-longueur d'onde. Les études comparent systématiquement le délai optimum à appliquer pour l'application visée, mais les résultats ne sont jamais comparés aux effets produits par une impulsion unique de densité d'énergie similaire. Des études similaires ne donnent pas les mêmes conclusions sur les optimums en terme de délai, ce qui néanmoins peut être expliqué par le fait que ce type d'expérience soit complexe. Il est à noter aussi que les données issues de la littérature sont parfois manquantes comme la taille des faisceaux sur cible, si le plan de focalisation est identique pour les deux longueurs d'onde et la répartition énergétique entre les faisceaux n'est pas toujours spécifiée ainsi que les incertitudes (délai, mesure). Aussi, la taille des faisceaux sur cible lorsqu'elle est renseignée n'est pas similaire entre les deux longueurs d'onde dans la grande majorité des cas complexifiant l'analyse.

Tableau 3. Expérience double impulsion et simulation en configuration mono longueur d'onde.

Auteurs	Matériaux	Expérience	Modèle	Moyen de mise en forme temporelle	Délais	Caractéristiques		Optimum	Ratio d'énergie
						1 <sup>er</sup> sous-impulsion	2 <sup>ème</sup> sous-impulsion		
<b>Zhou et al.</b> [139,152]	Silice fondue	Seuil d'ablation	Modèle des taux Keldysh STE	Ligne à retard	-1 ps à +1 ps	167 fs 1030 nm 23 µm 2,14 J/cm <sup>2</sup>		0 de délai	50:50
<b>Deng et al.</b> [27]	Silice Silicium	Claquage optique	Modèle des taux	Ligne à retard	0 à +1 ps	40 fs 800 nm 45 µm 0,3 à 2 J/cm <sup>2</sup>		300 fs de délai	50:50
<b>Chowdhury et al.</b> [30,137]	Silice Saphir	Profondeur d'ablation Volume ablaté Transmission Réflectivité	Keldysh Modèle des taux Schödinger 2D.	Ligne à retard	-1 à +300 ps	90 fs 800 nm 4 µm 1,1 à 13,4W/cm <sup>2</sup>		0 de délai	Variable
<b>Li et al.</b> [29]	Silice Borosilicate	Claquage optique	Modèle des taux	Ligne à retard	0 à +10 ps	25 fs 800 nm 35 µm 0,3 à 2 J/cm <sup>2</sup>		0 de délai	50:50
<b>Jiang et al.</b> [153]	K9 glass	Perçage par percussion + déplacement z + immersion eau		SLM	0 à +1 ps	50 fs 800 nm Waist : ? 20 µj		500 fs de délai	50:50
<b>Stoian et al.</b> [25,132] <b>Burakov et al.</b> [133]	Silice Saphir	Seuil ablation Ablation	Modèle des taux Helmholtz Deux températures	SLM		<b>Forme temporelle variable</b> 800 nm Waist : ? 6 J/cm <sup>2</sup> à 14 J/cm <sup>2</sup>			
<b>Hernandez et al.</b> [135]	Silice fondue	Profondeur d'ablation		SLM		<b>Forme temporelle variable</b> 800 nm 16,9 µm en x et 8,0 µm en y 0 à 30 J/cm <sup>2</sup>		Impulsion unique de 100 fs	

Tableau 4. Expérience double impulsion et simulation en configuration bi-longueur d'onde.

Auteurs	Matériaux	Expérience	Modèle	Délais	Caractéristiques		Optimum	Ratio d'énergie	
					1 <sup>er</sup> sous-impulsion	2 <sup>ème</sup> sous-impulsion			
<b>Tamura et al.</b> [151]	Silice fondue	Perçage		0 à +2 ns	15 ps 532 nm Waist ? 22,9 J/cm <sup>2</sup>	15 ps 1064 nm Waist ? 3,3 J/cm <sup>2</sup>	100 ps de délai	87:13	
<b>Yu et al.</b> [140]	Silice fondue	Seuil ablation	Modèle des taux	-600 à +600 fs	70 fs 266 nm 9,2 µm 0 à 1,5 J/cm <sup>2</sup>	60 fs 800 nm 25,4 µm 0 à 2,17 J/cm <sup>2</sup>	0 de délai	29:71 Et variable	
<b>Théberge et al.</b> [143]	Silice fondue Quartz	Volume ablaté		-100 à + 100 ps	180 fs 800 nm 20 µm 70 J/cm <sup>2</sup>	15 ns 532 nm 300 µm 23 et 30 J/cm <sup>2</sup>	30 ns de délai	70:30 75:25	
<b>Gedvilas et al.</b> [31]	Saphir	Seuil ablation	Modèle des taux	100 ps	10 ps 365 nm 3 et 6 µm	10 ps 1030 nm 3 et 6 µm	1/10 de l'énergie dans l'UV	Variable	
<b>Höhm et al.</b> [147]	Silice fondue	Texturation		-2 à + 2 ps	50 fs 400 nm 10 µm 2,4 à 3,3 J/cm <sup>2</sup>	50 fs 80 nm 18 µm 2,4 J/cm <sup>2</sup>		Variable	
<b>Chowdhury et al.</b> [144]	Silice fondue	Ablation Transmission Réflexion		-2 à 100 ps	132 fs 400nm 4 µm 0,1 à 4 µJ	90 fs 800 nm 4 µm 0,4 à 3,0 µJ	0 de délai	30 : 70 Et variable	
<b>Yuan et al.</b> [141]	Silice fondue		Modèle des taux Maxwell	50 fs	50 fs 400 nm Waist ?	50 fs 800 nm Waist ?	400 + 800 nm	Non communiqué	
<b>Guizard et Mouskeftaras et al.</b> [142,148]	Saphir			5 ps	5 J/cm <sup>2</sup> au total				
					50 fs 400 nm 11 µm 0,7 J/cm <sup>2</sup>	50 fs 400 nm 20 µm 2 J/cm <sup>2</sup>	50 fs 800 nm 11 µm 2,2 J/cm <sup>2</sup>	10 ps 800 nm 20 µm 10,3 J/cm <sup>2</sup>	400 nm 50 fs avec 800 nm 50 fs 24:76 16:84

## 4. Synthèse

Les matériaux diélectriques sont des isolants qui possèdent une bande interdite, ils sont naturellement transparents à la lumière visible. Cependant, pour de très fortes intensités laser accessibles grâce aux impulsions femtosecondes, la photoionisation devient non négligeable et des porteurs libres appelés aussi électrons de conduction sont générés. À leur tour par absorption linéaire, ces électrons peuvent absorber des photons de l'impulsion laser de façon analogue à un métal et ils sont chauffés. Lorsque leur énergie cinétique dépasse l'énergie du gap alors ces derniers peuvent collisionner des électrons en bande de valence, les promouvant en bande de conduction. Ce processus répété conduira à l'avalanche électronique si les caractéristiques de l'impulsion le permettent. Dans le même temps une proportion d'électrons recombine vers la bande de valence. L'ensemble de ces processus décrit la dynamique électronique. Dans le même temps, le matériau se polarise sous l'effet du champ électrique laser. Connaître la polarisation du matériau est important, elle permet de calculer la fonction diélectrique du matériau régissant les propriétés optiques du milieu pendant et après irradiation laser. La dynamique électronique, la fonction diélectrique et les équations de propagation couplées permettent de calculer le dépôt d'énergie laser. Pour une impulsion femtoseconde, la totalité de l'énergie de l'impulsion laser est absorbée avant même que la thermalisation entre les électrons et la matrice n'opère. Il s'ensuit une phase de thermalisation électronique et ionique au travers de collisions. À l'issue de la thermalisation qui dure une dizaine de picosecondes, la température ionique atteint sa valeur maximale. Puis celle-ci diffuse dans le matériau principalement par conduction. Dans le même temps, des gradients de température très importants dans la matrice apparaissent dans la zone du dépôt d'énergie. Le matériau se dilate sous l'élévation de sa température et des contraintes peuvent apparaître et initient des ondes mécaniques. Suivant la nature des contraintes, le matériau peut fissurer ou se rompre. Des changements de phases peuvent apparaître en fonction des conditions de pression et de température.

La nature des modifications du matériau (zone surfondue, ablation, contraintes, fissures) résulte de la quantité d'énergie laser absorbée durant l'interaction qui est en grande partie régie par la dynamique des électrons durant l'irradiation laser. Les lois régissant la dynamique électronique dépendent du matériau mais aussi des caractéristiques de l'impulsion laser en termes d'énergie, de durée d'impulsion, de longueur d'onde, de la polarisation, etc. Par conséquent, l'absorption de l'énergie laser, liée à l'efficacité de l'ablation laser, peut être améliorée en réglant les paramètres du laser, et/ou en effectuant une mise en forme spatiale ou temporelle du faisceau. Cependant, si les effets de l'irradiation laser à une impulsion sont relativement bien compris, des résultats contradictoires entre les sources existent lorsqu'une mise en forme des impulsions est réalisée ou lorsque deux sous-impulsions sont utilisées. Les travaux publiés n'apportent pas une réponse franche sur le bénéfice ou non du procédé double impulsion pour l'ablation laser. La réponse dépend du référentiel (simple ou double impulsion) et de l'observable. Les données sont très souvent incomplètes et des études supplémentaires comparant les modifications réalisées en régime mono impulsional et bi-impulsional doivent être entreprises.

# CHAPITRE 2. ABLATION DE LA SILICE FONDUE PAR DOUBLE IMPULSION LASER FEMTOSECONDES MONO- CHROMATIQUE

---

## Sommaire

---

<b>1. Dispositif expérimental et protocole.....</b>	<b>61</b>
1.1. Dispositif expérimental : laser, ligne à retard, métrologie et focalisation.....	61
1.2. Protocole d'analyse.....	64
<b>2. Développement du modèle de dynamique électronique pour le calcul du dépôt d'énergie.....</b>	<b>66</b>
<b>3. Résultats.....</b>	<b>71</b>
3.1. Transmissions et modifications optiques au seuil en fluence.....	71
3.2. Volume ablaté.....	73
3.3. Profondeur d'ablation.....	74
<b>4. Discussion.....</b>	<b>75</b>
4.1. Influence du délai d'impulsion à impulsion.....	75
4.2. Influence de l'état de polarisation.....	78
4.3. Effet de la coopération entre le délai d'impulsion à impulsion et l'état de polarisation.....	79
<b>5. Synthèse.....</b>	<b>82</b>

---

Le traitement du verre est un sujet de grand intérêt pour de nombreux domaines industriels tels que : la fabrication d'optiques, l'électronique ou les dispositifs médicaux. En ce qui concerne la technologie nanoseconde, l'utilisation de lasers femtoseconde permet d'obtenir une grande qualité d'usinage grâce à des propriétés d'absorption non linéaires et parce que les durées d'impulsions sont inférieures aux temps caractéristiques de relaxation du matériau. Néanmoins, le débit du traitement femtoseconde est encore très faible par rapport aux autres technologies laser. La mise en forme des impulsions temporelles et spatiales est une solution intelligente et flexible pour accroître l'efficacité du traitement par laser femtoseconde en pilotant efficacement la dynamique et l'absorption des électrons impliqués pendant l'irradiation laser.

Il a précédemment été vu dans la Section 3.3 du Chapitre 1 que le rôle d'une double impulsion laser dans les diélectriques a déjà été étudiée. Néanmoins, à notre connaissance, le rôle de la polarisation pour l'optimisation de l'efficacité de l'ablation dans l'irradiation à double impulsion des



matériaux diélectriques n'a pas encore été étudiée. Or comme précédemment vue dans la Section 1.3 du Chapitre 1, la polarisation du champ électrique affecte l'interaction entre le champ électrique et la matière. La polarisation peut ainsi être fortement impliquée dans les processus d'ionisation et peut donc potentiellement contribuer significativement à l'augmentation du volume ablaté. De plus, les résultats issus de la littérature ont été étudiés massivement avec des laser titane saphir à la longueur d'onde de **800 nm** et pour des durées d'impulsions qui en majorité sont inférieures à **100 fs**. Ces impulsions s'éloignent significativement des impulsions utilisées dans ces travaux de thèse en terme de durée d'impulsion  $\sim$ **500 fs** et de longueur d'onde **1030 nm**. Ces paramètres laser ont été choisis, car ils correspondent au standard des lasers industriels vendus par la société Amplitude Systèmes qui est un des partenaires du projet AS-TGV dans lequel s'inscrivent ces travaux de thèse.

Dans ce chapitre qui constitue une partie originale de ces travaux de thèse, l'effet de la mise en forme des impulsions temporelles sur l'ablation de la silice fondue est étudié par une expérience de pompe-pompe à une seule longueur d'onde (1030 nm) et avec deux sous-impulsions femtoseconde. Les résultats sur l'irradiation à une impulsion et deux sous-impulsions femtosecondes successives sont rapportés dans la silice fondue dans des régimes de sous-ablation et d'ablation. Deux configurations de polarisation ont été explorées : (i) deux sous-impulsions de Polarisation Linéaire Croisée (PLC) où les deux sous-impulsions ont une polarisation linéaire orthogonale. Puis une autre configuration avec deux sous-impulsions de Polarisation Circulaire Contre Rotative (PCCR) où les deux impulsions ont une polarisation circulaire tournant en sens inverse. Pour toutes les expériences, un rapport de fluence entre les deux sous-impulsions est fixé à **50:50**, ce rapport est choisi afin de se placer dans la condition la plus éloignée du cas d'irradiation à une seule impulsion, c'est-à-dire d'un rapport de fluence de **0:100** (ou **100:0**) et de ne pas favoriser le rôle d'une impulsion par rapport à l'autre et pour ne pas complexifier la compréhension des résultats. Néanmoins, un rapport d'énergie **70:30** a également été réalisé, mais les résultats ne sont pas présentés, car ils donnent des résultats similaires à ceux obtenus avec une impulsion unique.

L'objectif de ce travail est de mieux comprendre l'interaction laser matière d'une part, et d'ouvrir la voie à l'amélioration de l'efficacité d'ablation en régime de perçage d'autre part. Les résultats sont étudiés en faisant varier la fluence du laser, la configuration de la polarisation et le retard d'impulsion à impulsion. Aussi, les résultats sont discutés en termes de transmission optique et de volume ablaté. Les résultats montrent que le délai a une influence majeure sur le seuil de modification et d'ablation ainsi que sur les volumes ablatés. L'état de polarisation a également, dans une moindre mesure, une influence significative sur l'efficacité de l'ablation.

Pour faciliter l'interprétation des résultats expérimentaux, un modèle décrivant la dynamique électronique et l'absorption pour reproduire les électrons et l'absorption d'énergie a été développé. Les paramètres du modèle ont été définis en fonction des résultats de l'étude en impulsion unique : le volume ablaté a été comparé à la densité d'énergie absorbée théorique nécessaire pour chauffer le matériau cible jusqu'à la température d'ébullition de la silice fondue [154]. Ces paramètres du modèle ont ensuite été conservés dans le cadre de l'étude de l'irradiation laser à deux impulsions. Les courbes théoriques sont comparées aux résultats expérimentaux, ce qui permet de mieux comprendre les processus physiques sous-jacents.

Le chapitre est organisé comme suit. Le dispositif expérimental ainsi que le protocole d'analyse sont décrits dans la Section 1. Le modèle est décrit dans la Section 2. Les analyses de la mesure de transmission et du seuil de modification sont décrites dans la Section 3.1. Les mesures du volume

d'ablation effectuées dans les configurations PCCR et PLC sont présentées dans la Section 3.2. La Section 3.3 présente les résultats des profondeurs d'ablation. Enfin, les Sections 4.1, 4.2 et 4.3 sont consacrées respectivement à la discussion sur la variation de l'intensité cumulée de la double impulsion et de l'état de la polarisation résultante avec le délai entre les impulsions, et leur effet coopératif sur l'efficacité finale sur l'ablation. Ce chapitre fait référence à 4 annexes. L'annexe A présente la mesure de l'intensité spatiale du faisceau sur cible pour des faisceaux monochromatiques. L'annexe B présente le calcul de l'absorption linéaire induite par des électrons libres. L'annexe C présente des calculs de la polarisation résultante dans les configurations PCCR et PLC. La Section 2 de l'annexe E présente l'automatisation de l'analyse des données.

## 1. Dispositif expérimental et protocole

### 1.1. Dispositif expérimental : laser, ligne à retard, métrologie et focalisation

Le dispositif expérimental utilisé pour tous les tests comprend un laser femtoseconde, une ligne à retard, un élargisseur de faisceau, une platine de translation à 3 axes, un objectif de focalisation 10x (NA=0,26) et un puissance mètre.

La Figure 30 illustre le schéma du dispositif expérimental utilisé pour tous les tests. Le laser utilisé est un laser femtoseconde hybride (oscillateur et pré-ampli fibré et un amplificateur solide) dopé Yb (Yuja de Amplitude Systemes). La longueur d'onde centrale est de **1030 nm**. Les principaux paramètres du laser utilisés sont résumés dans le Tableau 5. La fréquence de répétition varie de **100 kHz** à **2 MHz**. Néanmoins, un modulateur acousto-optique permet de générer des fréquences de répétition plus faibles jusqu'à **500 Hz**. L'impulsion laser présente une forme gaussienne avec une largeur totale à mi-hauteur (FWHM) de **480 fs** mesurée avec un autocorrélateur. La largeur spectrale est de **3 nm**. Le temps de cohérence  $\tau_{ce}$  est d'environ **1,2 ps**, il est calculé avec la relation suivante :

$$\tau_{ce} = \frac{\lambda_0^2}{\Delta\lambda \cdot c} \quad (52)$$

Où  $\lambda_0$  est la longueur d'onde centrale,  $c$  la vitesse de la lumière et  $\Delta\lambda$  la largeur spectrale. La puissance moyenne maximale est de **10 W**.

Le temps de cohérence étant deux fois plus long que la durée d'impulsion, dès que le recouvrement temporel s'effectue, la polarisation totale qui résulte des polarisations des champs électriques de chacune des sous-impulsions sera alors affectée. La taille du faisceau focalisé est mesurée par un analyseur de faisceau WinCam, le diamètre du faisceau est de **7,5 ± 0,3 μm** à  $1/e^2$ . À noter que la taille des pixels de la caméra CMOS constituant la WinCam sont d'environ **3,3 μm**, ce qui n'est pas pertinent pour mesurer de petits faisceaux (**< 20 μm**) avec une bonne précision (il faut à minima une dizaine de pixels). C'est pourquoi un dispositif d'imagerie permettant d'imager le faisceau focalisé (au *waist*) avec un grossissement  $\times 5$  a été construit et mise en place sur le poste laser. Ce système d'imagerie comprend un objectif de microscope de focale **40 mm** et une lentille plan-convexe de **200 mm**. Le grossissement est déterminé au préalable en calibrant le dispositif avec une MIR USAF. Plus de détails sur ce dispositif d'imagerie se trouvent dans l'annexe A. L'ouverture numérique

effective, calculée à partir de la taille mesurée du faisceau focalisé, est d'environ 0,17. La mesure de l'énergie est effectuée après l'échantillon grâce à une photodiode (*modèle PH100-Si-HA-D0 de Gentec*). L'incertitude sur la mesure de la puissance est d'environ 5 %. Pour toutes les expériences, un rapport de fluence entre les deux sous-impulsions est de 50:50, ce rapport est choisi afin de se placer dans la condition la plus éloignée du cas d'irradiation à une seule impulsion, c'est-à-dire d'un rapport de fluence de 0:100 (ou 100:100) et de ne pas favoriser le rôle d'une impulsion par rapport à l'autre. Néanmoins, un rapport de fluence de 70:30 a tout de même été testé et les résultats tendent vers les résultats obtenus lors de l'irradiation en impulsion unique. La fluence totale est définie comme la somme des fluences de chacune des sous-impulsions. La fluence totale varie de 0,5 à 22 J/cm<sup>2</sup> avec une incertitude qui tient compte à la fois de la taille du faisceau ( $\pm 0,3 \mu\text{m}$ ) et des incertitudes sur la mesure de la puissance ( $\pm 5 \%$ ). Toutes les expériences ont été réalisées sur de la silice fondue de 1 mm d'épaisseur. Le faisceau est focalisé sur la surface de l'échantillon. La focalisation en face arrière a également été étudiée, car elle est très souvent utilisée dans les procédés de perçage de bas en haut (*bottom-up en anglais*). Cependant, l'étude de cette seconde approche est trop complexe à mettre en place, car la géométrie du cratère d'ablation dépend de la position du point focal par rapport à la face arrière, car le dépôt se fait en volume. Le volume est affecté dès que l'on change les paramètres laser (notamment la fluence des impulsions) ou le plan de focalisation.

Tableau 5. Principaux paramètres laser.

Longueur d'onde	Durée d'impulsion	Taux de répétition utilisé	Puissance moyenne maximale à 100 kHz
1030 nm	480 fs	500 Hz	10 W

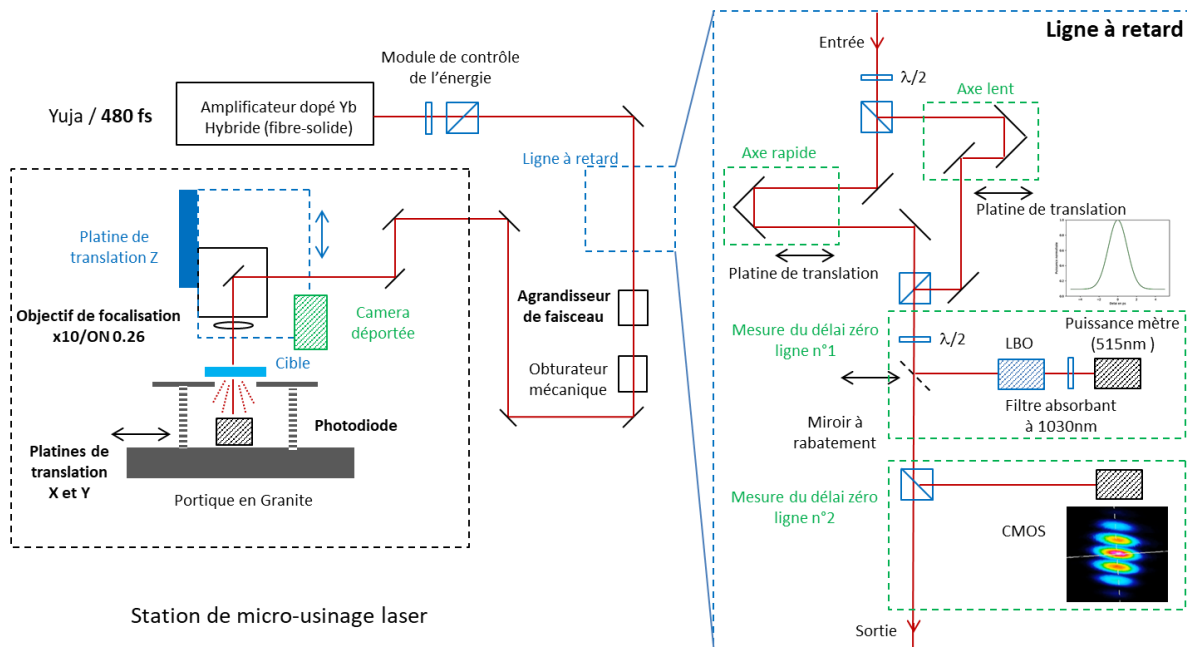


Figure 30. Schéma du banc optique laser avec la configuration générale (à gauche) et le détail des composants de la ligne à retard (à droite).

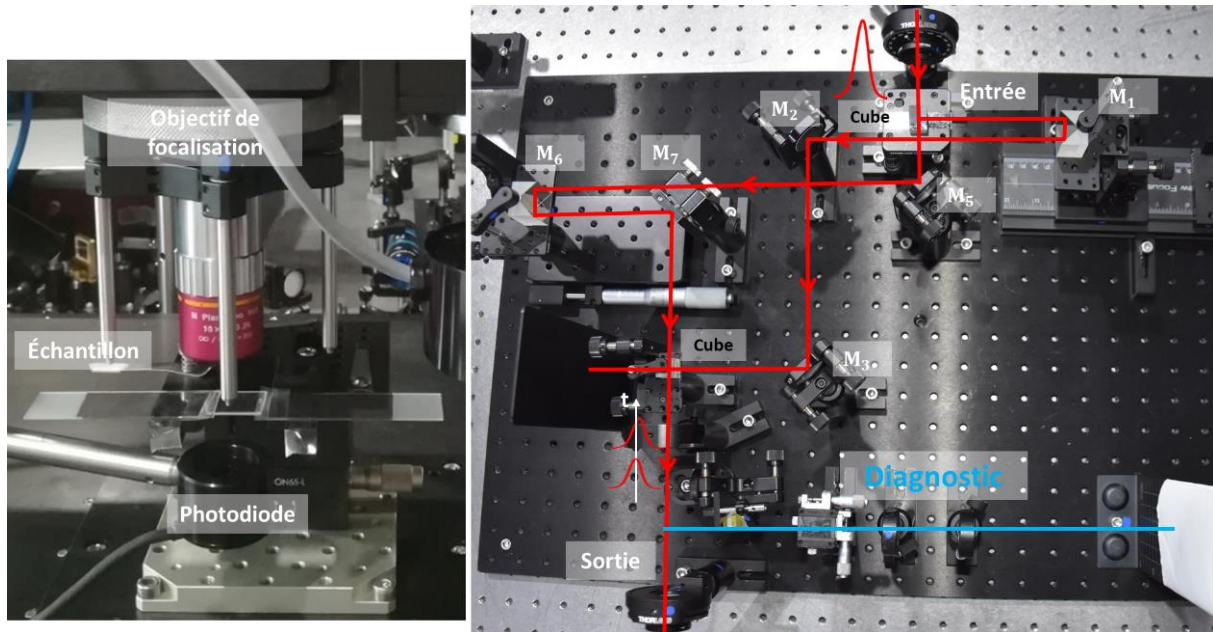


Figure 31. Photographie de la ligne à retard réalisée et de la focalisation du faisceau laser sur le matériau cible.

Une ligne à retard a été développée pour diviser l'impulsion initiale de la sortie du laser en deux sous-impulsions avec un délai contrôlé (Figure 30 et Figure 31). Une lame de phase demi-onde et un cube polarisant sont utilisés pour régler la polarisation afin de diviser le faisceau et de fixer le rapport d'énergie entre les deux sous-impulsions. Une platine de translation micrométrique est introduite sur un des bras de la ligne à retard permettant un réglage fin de la différence de chemin optique entre les deux sous-impulsions. Enfin, les deux faisceaux sont recombinaés à l'aide d'un cube polarisant, après quoi les deux sous-impulsions sont polarisées linéairement et orthogonalement l'une par rapport à l'autre. Pour les expériences réalisées en configuration PCCR, une lame de phase quart d'onde est introduite pour obtenir une onde polarisée circulaire. Ainsi, une polarisation circulaire dans le sens des aiguilles d'une montre ou dans le sens inverse des aiguilles d'une montre est obtenue. La précision pour positionner la platine de translation correspondant au délai zéro (nul) est d'environ  $\pm 130$  fs. Le délai d'impulsion à impulsion est varié de 0 à 5 ps échantillonné sur six valeurs dans le cadre de l'étude : 0 ; 0,133 ; 0,267 ; 0,5 ; 1,0 et 5,0 ps. Des délais supérieurs à 5,0 ps n'ont pas été explorés dû à des contraintes techniques. Pour chaque délai utilisé, la fluence totale est variée de 0,5 à 22 J/cm<sup>2</sup>.

Tableau 6. Principaux paramètres d'usinage.

Délais (ps) $\pm 130$ fs	Ratio énergie	Vitesse platine (mm/s)	ON	Diamètre faisceau (1/e <sup>2</sup> ) $\pm 0,3$ $\mu$ m	Fluence d'usinage (J/cm <sup>2</sup> ) $\pm 5$ % sur l'énergie + 0,3 $\mu$ m pour le waist
0					
0,133					
0,267	50 : 50				
0,5	70 : 30	10	0,17	7,5	0,5 à 22
1					
5					

Au cours de ces expériences, la colinéarité des deux bras de la ligne à retard lors de la recombinaison est un point essentiel et elle doit être maintenue jusqu'à la cible. La (grande) complexité est d'avoir deux faisceaux de même diamètre et de même ouverture numérique, en un seul et même point XYZ. Le dispositif créé et mise en place pour mesurer la taille du faisceau sur cible permet aussi en outre de vérifier le chevauchement spatial des deux sous-impulsions sur la surface de la cible et de corriger l'alignement si nécessaire. Aussi, le chevauchement doit être maintenu et ne pas varier lors de l'application du délai, c'est-à-dire lorsque la platine micrométrique bouge. Le réglage du délai nul est aussi un autre point sensible pour ce type d'expérience, deux techniques ont été étudiées pour déterminer la position du délai nul lorsque la collimation a été réalisée jusqu'à la cible.

La première technique consiste à utiliser l'effet non linéaire dans un cristal LBO de type II (accepte des champs électriques orthogonaux). En effet, comme énoncé dans la Section 1.3.1 du Chapitre 1, la conversion de fréquence est un phénomène non linéaire intervenant dans des cristaux non centrosymétriques. Le taux de conversion dépend de l'amplitude du champ électrique laser incident. Pour un délai théoriquement nul, les ondes étant cohérentes, l'amplitude totale du champ électrique résulte de la superposition des champs laser de chacune des impulsions. Cette onde résultante est maximale au délai zéro maximisant le taux de conversion dans le cristal LBO. Ainsi, une mesure de la puissance de sortie dans la plage verte (voir, ligne de réglage du délai zéro n°1) permet lorsque les deux sous-impulsions se chevauchent complètement (pour un délai nul), de maximiser la puissance verte. Cette puissance correspond au délai zéro. À noter qu'à  $\pm 130$  fs la puissance laser ne change pas de manière significative ou du moins les variations de puissance mesurées ne permettent pas de les dissocier des fluctuations naturelles sur la mesure de la puissance moyenne.

La deuxième technique consistent à faire interférer les deux ondes. Juste après la recombinaison des deux faisceaux en sortie de la ligne à retard, les impulsions sont polarisées orthogonalement. Pour les faire interférer, il faut qu'elles aient la même direction de polarisation. En pratique, cela consiste à utiliser une lame demi-onde. La lame est orientée pour faire tourner la direction de polarisation de  $45^\circ$ , puis à l'aide d'un cube polariseur la composante suivant l'axe x est conservée (voir Figure 30, ligne de réglage du délai zéro n°2). En mesurant la puissance, il est vérifié que l'amplitude des deux ondes est la même. Lors du chevauchement temporel, des modulations d'intensité apparaissent (image de la caméra CMOS en Figure 30). Le début et la fin de ces événements permettent d'en déduire le délai zéro. Celui-ci se trouve au milieu de ces deux événements. Il est intéressant de remarquer que ces deux techniques donnent la même position et la même incertitude à  $\pm 130$  fs. Au délai nul et à un demi-cycle optique, l'extinction totale est obtenue. En polarisation circulaire, cette technique ne peut être utilisée, cependant l'ajout d'une lame quart d'onde pour obtenir deux polarisations circulaires ne change pas l'incertitude sur le délai.

## 1.2. Protocole d'analyse

Le taux de transmission et le volume ablaté sont respectivement mesurés et calculés pour chaque ensemble de paramètres. Sur la Figure 32(a) le schéma illustre la trajectoire du laser pour une vue de dessus de l'échantillon de silice. L'échantillon est déplacé afin de mesurer la puissance transmise dans l'air, et à travers l'échantillon grâce à une photodiode placée en dessous de l'échantillon ( voir Figure 32). Il est à noter qu'il n'y a pas de chevauchement spatial entre les doubles impulsions successives

lors du déplacement. Le graphique dans la Figure 32(b) montre un exemple de la puissance transmise mesurée (donnée brute) pour un jeu de paramètre fixé. Sur la Figure 32 en [1], le faisceau laser traverse l'air, la mesure de la transmission dans l'air est illustrée par des points bleus sur le graphique montrant la puissance en fonction de temps. Puis, en [2] le faisceau laser traverse l'échantillon de silice. La puissance mesurée est représentée par des points orange sur le graphique. Le laser est ensuite coupé et revient. Les points rouges donnent la puissance mesurée (La valeur est autour de zéro, car le laser est coupé, c'est une mesure du bruit). Au total, chaque test a été répété trois fois pour chaque ensemble de paramètres afin de réduire l'incertitude des résultats. La valeur mesurée de la puissance dans la zone [3] permet de retrancher le bruit ambiant sur la puissance mesurée en zone [1] et [2]. Enfin, le pourcentage de puissance transmise est donné par le rapport entre la puissance mesurée à travers l'échantillon (en [2]) sur la puissance mesurée dans l'air en [1].

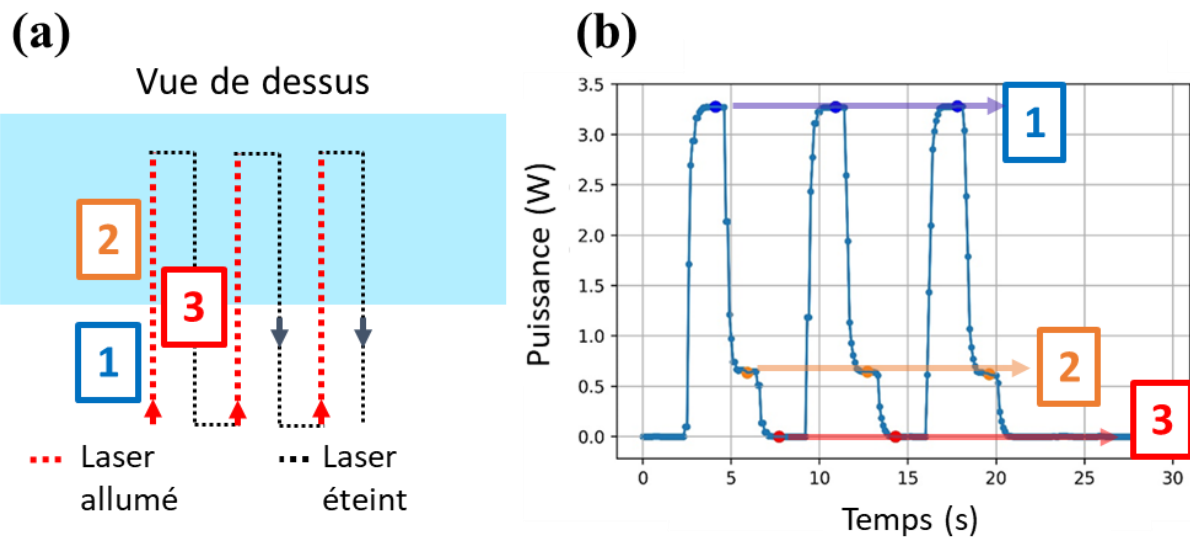


Figure 32. Illustration du parcours du laser pour une vue de dessus de l'échantillon de silice en (a) et un exemple du graphique obtenu de la mesure de la puissance transmise en (b) [155].  
Vitesse de translation : 10 mm/s et fréquence laser : 500 Hz.

Pour toutes les expériences, une fréquence de répétition de 500 Hz et une vitesse de balayage de 10 mm/s ont été utilisées afin de maintenir une distance de 20  $\mu\text{m}$  entre les doubles impulsions successives. Ce faisant, la taille du faisceau étant de 7,5  $\mu\text{m}$ , il n'y a pas de chevauchement spatial entre les doubles impulsions successives, c'est-à-dire que chaque cratère a été produit par une seule irradiation à double impulsion. Un exemple d'une vue après usinage est donné sur la Figure 33(a) pour une vue de dessus au microscope optique. Les mesures topographiques ont été effectuées à l'aide d'un microscope confocal Leica DCM 3D basé sur la technologie LED avec un objectif 50  $\times$ /0,90. Le volume d'un cratère d'ablation a ensuite été calculé à partir de son profil 3D en intégrant le volume sous la surface en X et en Y de la Figure 33(b). Pour chaque cratère, quatre à six mesures ont été prises en compte pour le calcul du volume d'ablation afin de réduire les incertitudes. L'incertitude sur le volume ablaté est environ de 10 % (précision latérale en X,Y de 332 nm et résolution au nanomètre en Z), les diamètres aux seuils d'ablation en fluence mesurés sont de l'ordre du micromètre.



Pour l'analyse des données, un programme Python a été développé pour automatiser le calcul de la transmission et le calcul du volume ablaté en prenant en compte une correction de planéité des données brutes. Le programme Python développé pour le traitement des données est plus largement détaillé dans la Section 2 de l'annexe E. L'automatisation du traitement des résultats permet de réduire les erreurs humaines qui peuvent être insérées lors d'un traitement des données dit « manuel ». Aussi, un système de vérification sous forme graphique a été développé pour suivre le déroulement du processus d'analyse et permet de cibler rapidement les cas non traités par l'algorithme, les erreurs ou les éventuels points aberrants. Cela permet de s'affranchir des cas particuliers : poussière d'ablation présente, zone d'intégration incorrecte, une donnée manquante sur la transmission ou encore une mauvaise correction du défaut de planéité.

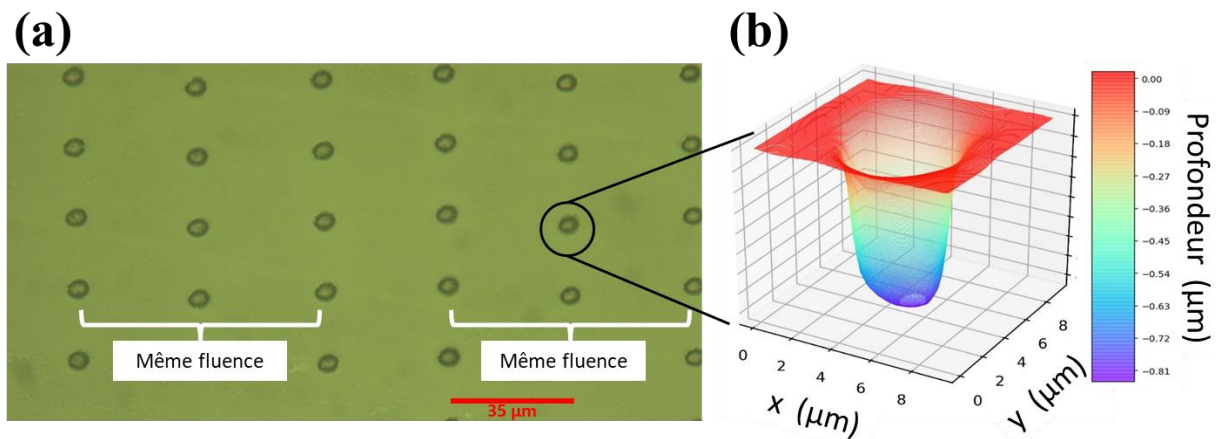


Figure 33. Vue du dessus des cratères d'ablation en (a) et exemple d'un profil 3D mesuré par microscopie confocale en (b).

## 2. Développement du modèle de dynamique électronique pour le calcul du dépôt d'énergie

Cette section est consacrée à la modélisation de l'énergie laser absorbée pour étayer les interprétations des observations expérimentales. Le volume ablaté obtenu expérimentalement est interprété en terme de densité d'énergie absorbée dans le modèle. En effet, une densité d'énergie absorbée (qui peut être associée à une température de la matière) peut conduire à des modifications de la matière et, finalement à l'ablation de la matière (voir Section 3.1 du Chapitre 1). Dans la Section 1.2 du Chapitre 1 sont décrits différents processus intervenant dans la dynamique électronique. Pour cette étude, quatre processus sont considérés pour décrire la dynamique des électrons dans le matériau diélectrique : (i) la photoionisation, (ii) le chauffage des électrons, (iii) l'ionisation par impact et (iv) la recombinaison, tous illustrés par la Figure 34. Le code développé est un code sans dimension spatiale. Il n'inclut pas la propagation laser, il ne peut donc être complètement quantitatif. Le modèle a été développé dans l'unique but de comprendre et d'évaluer les tendances générales observées dans les expériences. La photoionisation est calculée avec l'expression de Keldysh. Le chauffage électronique et l'ionisation par impact sont calculés sur la base du modèle de Rethfeld (l'Eq. (5)) présenté dans la

Section 1.2.2. du Chapitre 1. Le modèle a ensuite été amélioré dans le cadre de cette thèse en tenant compte de la recombinaison électronique et du dépeuplement de la bande de valence au cours du temps.

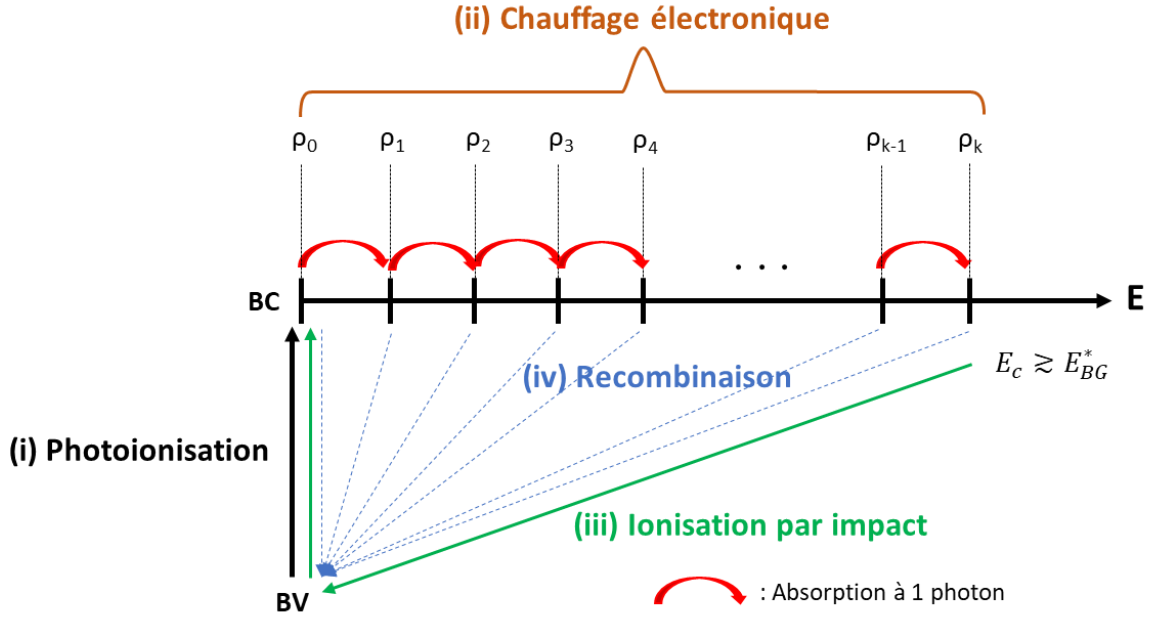


Figure 34. Ensemble des processus influençant la dynamique des électrons en bande de conduction. Cette dynamique comprend (i) la photoionisation, (ii) le chauffage électronique, (iii) l'ionisation par impact et (iv) la recombinaison électronique. La photoionisation est calculée avec l'expression de Keldysh, le chauffage électronique et l'ionisation par impact sur la base du modèle de Rethfeld qui a ensuite été amélioré dans le cadre de cette thèse.

La dynamique des électrons peut être décrite par le système d'équations suivant :

$$\begin{aligned}
 \dot{\rho}_0 &= \left( \frac{n_v - n_e}{n_v} \right) (\dot{w}_{PI} + 2 \tilde{\alpha} \rho_k) - \sigma_1 \rho_0 - \frac{\rho_0}{\tau_{STE}} \\
 \dot{\rho}_1 &= \sigma_1 \rho_0 - \sigma_1 \rho_1 - \frac{\rho_1}{\tau_{STE}} \\
 &= \vdots \\
 \dot{\rho}_{k-1} &= \sigma_1 \rho_{k-2} - \sigma_1 \rho_{k-1} - \frac{\rho_{k-1}}{\tau_{STE}} \\
 \dot{\rho}_k &= -2 \tilde{\alpha} \rho_k \left( \frac{n_v - n_e}{n_v} \right) + \sigma_1 \rho_{k-1} - \frac{\rho_k}{\tau_{STE}}
 \end{aligned} \tag{53}$$

Dans ce modèle, l'énergie des électrons en bande de conduction est répartie suivant une distribution à  $k_{\max}$  niveaux. Où  $\rho_k$  est la densité des électrons dans la bande de conduction au niveau d'énergie  $E_k = k\hbar\omega$  avec  $k$  un nombre entier correspondant à divers états d'énergie dans la bande de conduction,  $E_0 = 0$  étant le niveau d'énergie le plus bas de la bande de conduction.  $E_{k_{\max}} = k_{\max}\hbar\omega$  est le niveau énergétique maximal.  $\dot{w}_{PI}$  est le taux de photoionisation, il est modélisé en utilisant l'expression de Keldysh (Eq. (2)) présenté dans la Section 1.2.1 du Chapitre 1.  $\tilde{\alpha}$  correspond à la fréquence de collision des électrons de conduction avec les électrons de valence.  $\sigma_1$  est le taux d'absorption d'un photon pour un électron dans la bande de conduction. Le terme  $n_v$  est la



population initiale d'électrons dans la bande de valence. Le terme  $\left(\frac{n_v - n_e}{n_v}\right)$  a été ajouté au modèle de Rethfeld afin de rendre compte du dépeuplement des électrons dans la bande de valence pendant l'ionisation.  $\frac{\rho_k}{\tau_{STE}}$  est le taux de recombinaison électronique (présenté dans l'Eq. (6) de la Section 1.2.3 du Chapitre 1) dans la couche d'énergie  $E_k$  a été ajouté au modèle de Rethfeld. Avec  $\tau_{STE}$  le temps d'autopiégeage moyen supposé identique et constant dans chaque niveau d'énergie  $E_k$ .  $\dot{n}_e = \sum_{k=0}^{k_{max}} \dot{\rho}_k$  est la population totale d'électrons dans la bande de conduction.

Différentes hypothèses sont faites dans le modèle, elles sont décrites dans ce qui suit. Il est supposée une bande interdite parfaite, c'est-à-dire sans défaut, de plus, les niveaux d'énergie dans la bande interdite induits par les excitons autopiégés (STE) ne sont pas pris en compte pour simplifier le modèle. En revanche, le temps d'autopiégeage de 150 fs sur les niveaux STE est utilisé comme temps de recombinaison. La fréquence de collision électron-électron et le temps de recombinaison électronique sont supposés indépendants de la température et de la densité électronique en bande de conduction. L'évolution de la réflectivité n'est pas prise en compte, car le calcul ne possède pas de dimension dans la profondeur, il n'y a donc pas de propagation. En effet, les tailles caractéristiques du dépôt d'énergie étant de l'ordre de grandeur de l'épaisseur de peau [156] (pour les paramètres laser considérés) c'est-à-dire inférieure à la longueur d'onde, la continuité du champ électrique entre l'air et le matériau sur des distances inférieures à la longueur d'onde doit être conservée.

Le système d'équations précédemment présenté dans l'Eq. (53) permet d'évaluer la densité électronique à tout instant. Connaître en tout temps la densité électronique permet de calculer la fonction diélectrique et les indices optiques qui permettent de calculer l'épaisseur de peau et ainsi la densité d'énergie laser absorbée par les électrons. Du fait de la brièveté de l'impulsion femtoseconde, l'énergie a été déposée dans les électrons avant même que la thermalisation entre les électrons et la matrice n'opère. En supposant que toute l'énergie des électrons a été déposée sur une taille caractéristique à celle de l'épaisseur de peau [156] et en supposant que toute l'énergie est transférée aux phonons ; la température de la matrice est alors directement donnée par la densité d'énergie absorbée par les électrons  $Q_{total}$  à la fin de l'impulsion laser. La densité d'énergie déposée est finalement calculée suivant la relation suivante :

$$Q_{total} = 2 \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{I(t)}{\delta(t)} \cdot dt \quad (54)$$

où  $\delta$  est la profondeur de peau donnée par l'Eq. (33), le facteur 2 rend compte de la différence d'épaisseur de peau sur laquelle le rayonnement est absorbé entre l'intensité laser et le champ électrique laser (car  $I \propto |E|^2$ ). L'intensité du laser  $I(t)$  est évaluée à partir des mesures expérimentales dans l'Eq. (55), où  $F$  est la fluence totale mesurée expérimentalement et  $\tau_{FWHM}$  est la durée de l'impulsion FWHM.

$$I(t) = \frac{4 F}{\tau_{FWHM}} \cdot \frac{\sqrt{\ln(2)}}{\sqrt{\pi}} \cdot e^{-4 \ln(2) \left(\frac{t}{\tau_{FWHM}}\right)^2} \quad (55)$$

La densité électronique donnée dans l'Eq. (53) permet avec la fonction diélectrique présentée dans l'Eq. (23) dans la Section 1.3.2 du Chapitre 1 rappelé ci-dessous, de calculer les propriétés optiques du matériau et l'épaisseur de peau.

$$\varepsilon = 1 + (n_o^2 - 1) \left( \frac{n_v - n_e}{n_v} \right) + i \frac{\omega_p^2}{\omega \left( \frac{1}{\tau_c} - i\omega \right)}$$

La fonction diélectrique est calculée en calculant la contribution au premier ordre des électrons de valence et de conduction à la polarisation. La polarisation des électrons de conduction est calculée en utilisant le modèle de Drude (voir Chapitre 1, Section 1.3 pour plus d'informations). Du calcul de la fonction diélectrique sont extraits les indices optiques réels (indice de réfraction) et indices imaginaires (coefficient d'absorption), respectivement donnés par les Eq. (26) et Eq. (27). À noter que pour des champs importants, des phénomènes non linéaires apparaissent sur la polarisabilité du matériau, modifiant la fonction diélectrique. Ces effets non linéaires donnent lieu au doublage de fréquence, à l'effet Kerr, etc. Ces effets ne sont pas pris en compte dans les modèles développés pour ces études.

Pour évaluer numériquement l'intégrale de l'Eq. (54) qui donne la densité d'énergie déposée, le domaine temporel est limité à l'intervalle  $[-2\tau, 2\tau]$  dans lequel la convergence du calcul a été validée. Afin de comparer les résultats expérimentaux et les simulations, des paramètres tels que la fréquence de collision des électrons ont été fixés dans le cas d'une irradiation laser à impulsion unique en comparant la fluence seuil du volume ablaté avec la densité d'énergie absorbée nécessaire pour atteindre la température d'ébullition de  $2950\text{ °C}$  [154] correspondant à une densité d'énergie équivalente à environ  $4\text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$ . La Figure 35 montre la densité d'énergie absorbée théorique en fonction de la fluence pour une irradiation par laser à impulsion unique obtenue avec les paramètres de modélisation optimisés fournis dans le Tableau 7. La ligne horizontale rouge en pointillée indique la densité d'énergie absorbée nécessaire pour atteindre la température d'ébullition. Nous observons que la densité d'énergie absorbée souhaitée est atteinte pour des valeurs de fluence supérieures à  $3,0\text{ J/cm}^2$  ; cette valeur est relativement proche de la fluence du seuil d'ablation obtenue expérimentalement d'environ  $2,2\text{ J/cm}^2$ , un meilleur accord étant attendu en incluant correctement les effets de propagation, ce qui n'entre pas dans le cadre de ce travail.

La modélisation comprend également les éléments suivants qui ont permis d'obtenir une fluence seuil raisonnable : le taux d'absorption d'un photon dans la bande de conduction est fixé à  $2,8 \times 10^{-6}\text{ m}^4/\text{V}^4\text{s}$  à  $1030\text{ nm}$ . Le taux d'absorption d'un photon à  $1030\text{ nm}$  a été calculé selon les résultats de Rethfeld *et al.* [18] présenté à  $500\text{ nm}$  en utilisant une loi d'échelle variant en  $\lambda^3$  conformément aux résultats de la littérature présenté dans la Section 1.2.2 du Chapitre 1. De plus, le taux d'ionisation calculé avec l'expression de Keldysh est multiplié par un facteur deux pour reproduire au mieux les résultats expérimentaux. Ce facteur rend compte de la création de défauts au cours de l'interaction et des états possibles induits dans la bande interdite ainsi que des hypothèses réalisées dans l'expression de Keldysh notamment celle sur les règles de sélection qui peuvent biaiser le calcul [37],[39-42]. Enfin, ce modèle prend en compte l'absorption totale de l'énergie d'impulsion entrante sur l'épaisseur de peau. Les effets de réflexion ne sont pas pris en compte, car ils se produisent sur une couche d'épaisseur plus importante que l'épaisseur de peau à la densité critique du plasma. Lorsque la densité critique est atteinte, le champ est atténué sur une distance de l'ordre de l'épaisseur de peau, ainsi son amplitude décroît. Pour modéliser cet effet sans résoudre explicitement les équations de Maxwell, l'amplitude du champ  $E_0$  est renormalisée comme  $\frac{E_0}{e}$  correspondant à la valeur du champ à une distance de l'épaisseur de peau afin de rendre compte de l'atténuation du champ sur l'épaisseur de peau lorsque la densité électronique critique est atteinte. Le réglage de ces paramètres dans le cas

d'une irradiation laser à une seule impulsion ont été conservés dans l'étude à deux sous-impulsions. Il est à noter que ce modèle n'inclut pas l'influence des différentes polarisations de la sous-impulsion.

Tableau 7. Paramètres du modèle.

Bande interdite	7 eV
Temps d'autopiégeage [67] : $\tau_{STF}$	150 fs
Fréquence de collision des électrons de conduction avec les électrons de valence : $\tilde{\alpha}$	$10^{15} \text{ s}^{-1}$
Taux d'absorption d'un photon dans la bande de conduction : $\sigma_1$	$2,8 \times 10^6 \text{ m}^1/\text{V}^1\text{s}$
Indice de réfraction linéaire [161]	1,45
Densité électronique dans la bande de valence : $n_v$	$2 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$
Temps moyen de collision électronique	0,5 fs

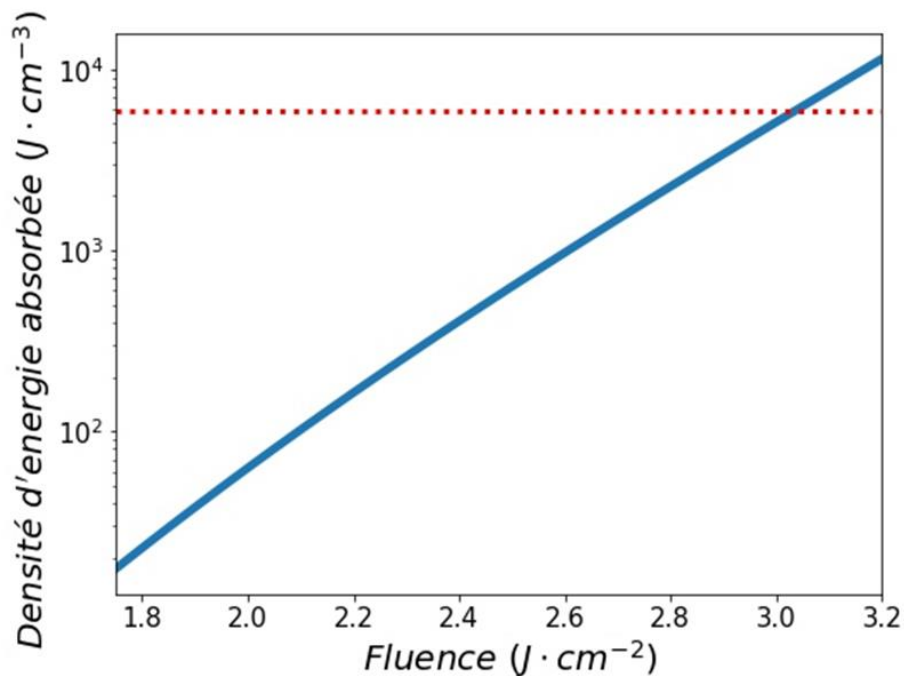


Figure 35. La ligne bleue représente la densité d'énergie théorique absorbée en fonction de la fluence pour une irradiation laser à impulsion unique obtenue avec les paramètres de modélisation fournis dans le tableau 2. La ligne horizontale rouge en pointillée indique la densité d'énergie absorbée nécessaire pour atteindre la température d'ébullition.

### 3. Résultats

Durant l'interaction laser matière, par conservation de l'énergie, la somme de l'énergie lumineuse transmise, absorbée et réfléchiée est égale à l'énergie contenue dans l'impulsion laser incidente. Dans les expériences, deux observables sont utilisées pour interpréter les résultats : la transmission optique et le volume ablaté. La transmission optique mesurée renseigne directement sur le taux moyen de transmission alors que le volume ablaté peut être assimilé à de l'absorption. Ces deux observables suffisent, en dépit d'une mesure de la réflectivité, à établir des hypothèses fortes sur les processus physiques impliqués durant l'interaction.

Les résultats expérimentaux sont dans un premier temps décrits et seront discutés dans un second temps dans la Section 4.

#### 3.1. Transmissions et modifications optiques au seuil en fluence

Cette section est consacrée aux mesures de transmission dans les deux configurations PLC et PCCR. La Figure 36(a)-(b) représente la transmission optique en fonction de la fluence totale pour différents délais d'impulsion à impulsion allant de 0 à 5 ps respectivement dans les états de polarisation PLC et PCCR. La Figure 37(a)-(b) sont des agrandissements à basses fluences de la transmission de la Figure 36(a)-(b). Pour des fluences inférieures à  $0,9 \text{ J/cm}^2$ , il n'y a pas de modification de surface et la transmission optique est d'environ 94 %, ce qui correspond à la valeur expérimentale de la transmission optique sans modification du matériau après réflexion sur la face avant et arrière de l'échantillon. Cette valeur est différente de la valeur théorique de 93,4 % obtenue avec les équations de Fresnel en raison des incertitudes expérimentales. Pour des fluences plus élevées, la transmission optique diminue en raison de l'absorption non linéaire. Le seuil de fluence de modification est ici défini comme la valeur de fluence à laquelle la transmission devient inférieure à 94 %, c'est-à-dire lorsque l'absorption se produit.

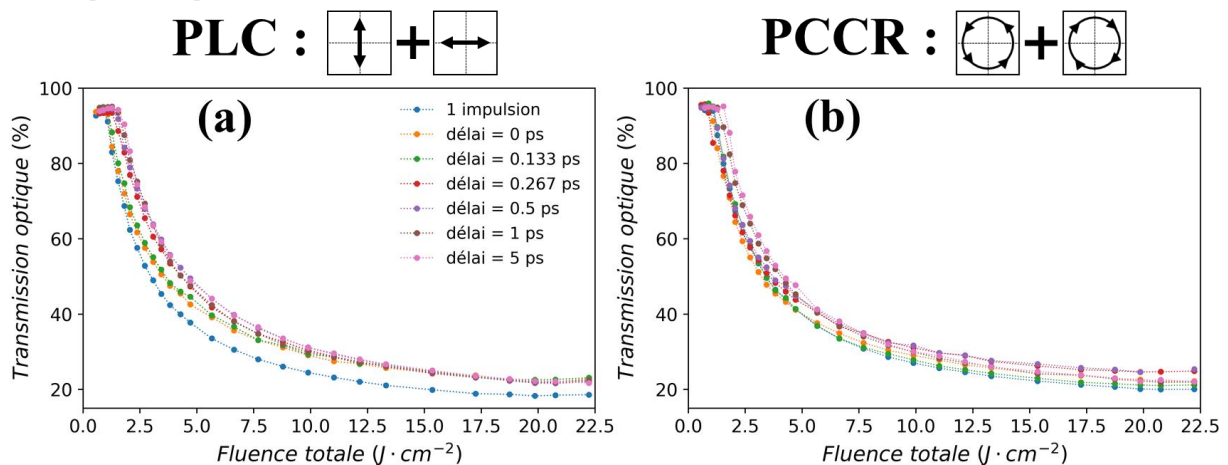


Figure 36. Transmission optique en fonction de la fluence totale dans la configuration (a) PLC et (b) PCCR. Les points complets correspondent aux données mesurées. L'incertitude de mesure de la fluence tient compte à la fois de la taille du faisceau ( $\pm 0,3 \mu\text{m}$ ) et des incertitudes sur la mesure de la puissance ( $\pm 5 \%$ ). Les lignes en pointillés sont des guides pour les yeux.

La Figure 37(c)-(d) décrit l'évolution de la fluence du seuil de modification en fonction du délai. La fluence du seuil de modification augmente avec le délai avec une évolution qui dépend de la configuration de la polarisation. En effet, la baisse de la transmission optique se produit après 133 fs en configuration PLC et après 500 fs en configuration PCCR. Il est à noter que dans la configuration PCCR, l'irradiation laser à double impulsion sans délai entraîne une transmission optique plus faible que celle à une impulsion unique. Une explication plus détaillée de ces observations est donnée dans la Section 4.2. Au-dessus du seuil de modification (Figure 36(a)-(b)), lorsque la fluence augmente, la transmission chute rapidement en raison de l'absorption menant aux cratères d'ablation. Dans les deux configurations une saturation de la transmission est observée autour de 20-30 % à forte fluence ( $> 10 \text{ J/cm}^2$ ). En configuration PLC, la courbe réalisée en impulsion unique est légèrement en dessous des autres, alors que ce n'est pas le cas en configuration PCCR.

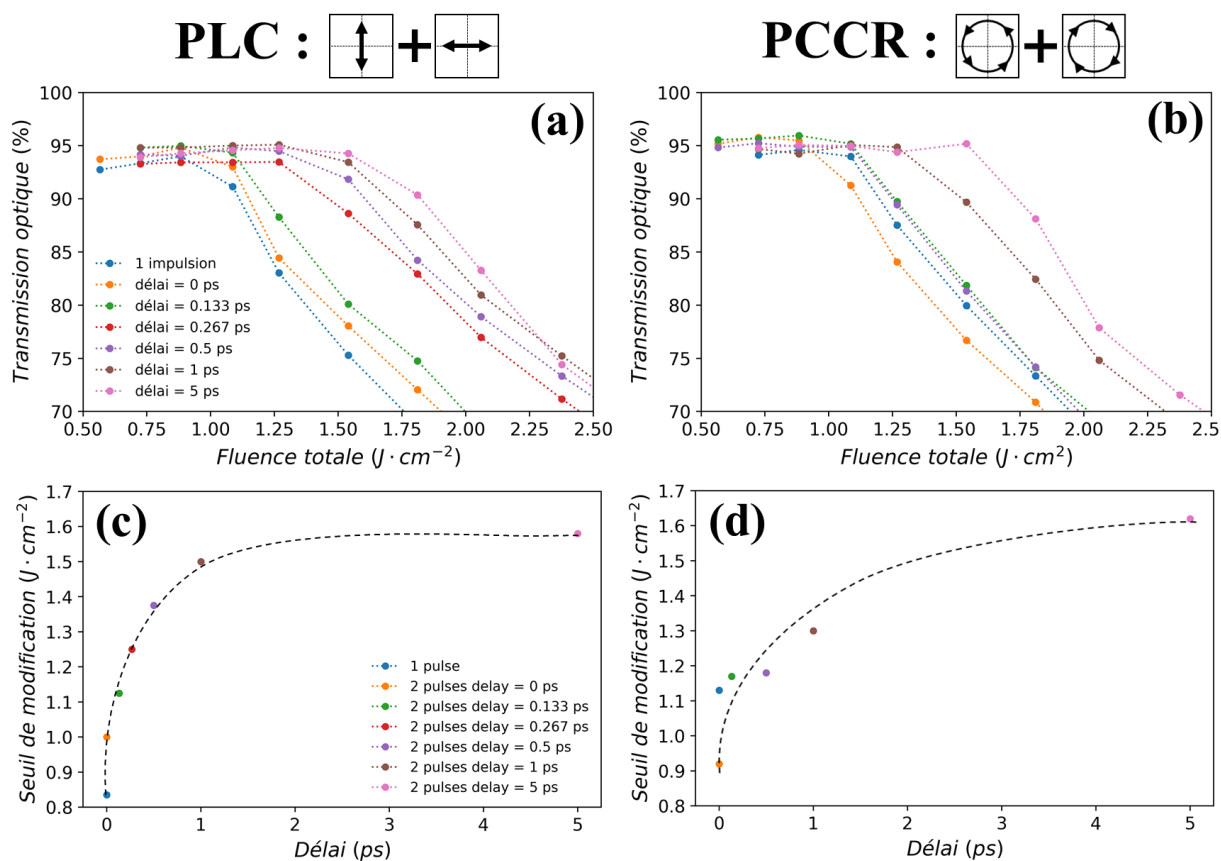


Figure 37. Transmission optique en fonction de la fluence totale dans la configuration (a) PLC et (b) PCCR issus des courbes en Figure 36(a)-(b). Les fluences de seuil de modification, correspondant aux valeurs de fluence où la transmission devient inférieure à 94 %, sont extraites de (a) et (b) et sont respectivement tracées en (c) et (d) en fonction du délai temporel pour les configurations PLC et PCCR. Les points complets correspondent aux données mesurées. Les lignes en pointillés sont des guides pour les yeux.

### 3.2. Volume ablaté

La Figure 38 présente l'évolution du volume ablaté en fonction de la fluence pour des délais d'impulsion à impulsion allant de 0 à 5 ps, dans les deux configurations PLC et PCCR. Le résultat de l'irradiation laser à une seule impulsion est également présenté à titre de référence. Le volume ablaté augmente de façon relativement linéaire avec la fluence jusqu'à 20 J/cm<sup>2</sup> pour l'irradiation laser avec des impulsions simples et doubles (Figure 38(a)-(b)). Le comportement linéaire a été vérifié par une régression linéaire (non représenté ici), le coefficient de corrélation R<sup>2</sup> est d'environ 0,96 dans la configuration PCCR et de 0,98 dans la configuration PLC. Comme le montrent la Figure 38(c)-(d), le volume ablaté présente une chute drastique en augmentant le délai quelle que soit la fluence, conformément au comportement des fluences au seuil de modification et d'ablation observées sur les Figure 37(c)-(d) et Figure 38(a)-(b).

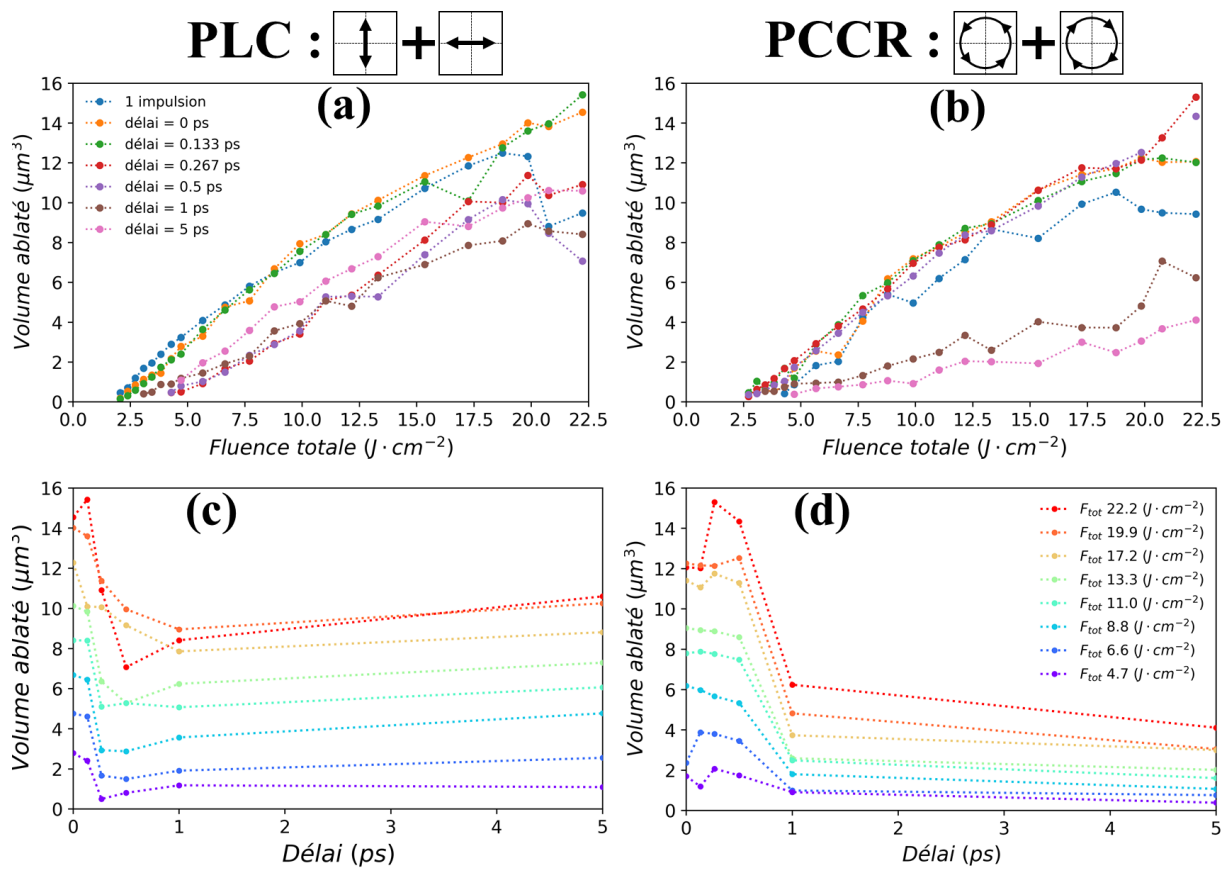


Figure 38. Volume ablaté en fonction de la fluence pour un délai allant de 0 à 5 ps pour la silice fondue pour la configuration (a) PLC et (b) PCCR. En (c) et (d), le volume extrait de (a) et (b) est indiqué en fonction du délai pour des fluences allant de 4,7 à 22,2 J/cm<sup>2</sup> respectivement en configuration PLC et PCCR. L'incertitude de mesure de la fluence tient compte à la fois de la taille du faisceau ( $\pm 0,3 \mu\text{m}$ ) et des incertitudes sur la mesure de la puissance ( $\pm 5 \%$ ). L'incertitude sur le volume mesuré est de ( $\pm 10 \%$ ). Les points complets correspondent aux données mesurées. Les lignes en pointillés sont des guides pour les yeux.

Bien que pour les deux configurations de polarisation (PLC et PCCR) les valeurs des volumes ablatés sont similaires pour des délais courts, la chute du volume d'ablation se produit pour des délais supérieurs à **133 fs** dans la configuration PLC et supérieurs à **500 fs** dans la configuration PCCR. Ces valeurs de délai spécifiques sont définies ci-après comme le délai de transition pour chaque configuration de polarisation. Il est également à noter que pour des délais allant de **267 fs** à **500 fs**, les valeurs des volumes ablatés dans la configuration PLC présentent des volumes ablatés inférieurs à la configuration PCCR (voir Figure 38(c)). Enfin, le volume ablaté reste presque constant pour des délais supérieurs à **1 ps**, lorsque les deux sous-impulsions ne se chevauchent plus.

### 3.3. Profondeur d'ablation

La Figure 39(a)-(b) présente l'évolution de la profondeur d'ablation maximum en fonction de la fluence, pour un délai allant de **0** à **5 ps** respectivement pour la configuration PLC et PCCR. Les résultats sous irradiation laser en impulsion unique sont toujours présentés. Lorsque la fluence augmente, la profondeur d'ablation croît. Conformément aux résultats présentés dans la littérature et dans la Section 3.2 du Chapitre 1, une saturation de la profondeur d'ablation est observée avec l'augmentation de la fluence. Pour une impulsion unique et pour tous les délais d'impulsion à impulsion utilisés en configuration PLC et lorsque les délais d'impulsions à impulsions sont inférieurs à **1 ps** en configuration PCCR. Le coefficient de corrélation  $R^2$  est d'environ **0,95** dans la configuration PLC et de **0,90** dans la configuration PCCR (régression réalisée avec l'Eq. (50) de la Section 3.2 du Chapitre 1, non représenté sur ici). Il faut noter que ce sont les mêmes délais (appelés aussi valeur de transmission) qui marquent la décroissance du volume ablaté et de la profondeur d'ablation en configuration PCCR.

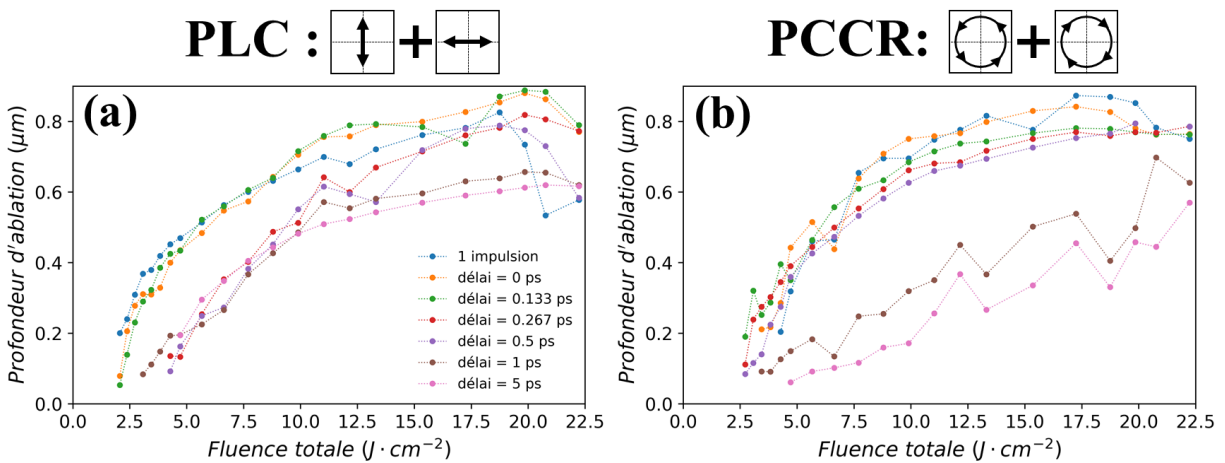


Figure 39. Profondeur d'ablation en fonction de la fluence pour un délai allant de **0** à **5 ps** pour la silice fondue pour la configuration (a) PLC et (b) PCCR. L'incertitude de mesure de la fluence tient compte à la fois de la taille du faisceau ( $\pm 0,3 \mu\text{m}$ ) et des incertitudes sur la mesure de la puissance ( $\pm 5 \%$ ). L'incertitude sur la profondeur d'ablation est de ( $\pm 10 \%$ ). Les points complets correspondent aux données mesurées. Les lignes en pointillés sont des guides pour les yeux.

Les diamètres ne sont pas présentés par souci de concision. Cependant, la tendance représentative sur l'ensemble des résultats est une augmentation du diamètre d'ablation avec l'augmentation croissante de la fluence et une diminution du diamètre d'ablation lorsque le délai augmente pour une fluence fixée.

## 4. Discussion

La discussion des résultats se décompose en trois sections. Dans un premier temps l'influence du délai est analysée, ensuite les effets liés à l'état de la polarisation lors du chevauchement temporel des deux impulsions sont discutés. Enfin, la troisième section est consacrée à l'analyse des effets coopératifs entre l'état de polarisation et le délai.

### 4.1. Influence du délai d'impulsion à impulsion

Au début de l'interaction laser-matière, la densité d'électrons libres augmente fortement en raison de la dépendance non linéaire de la photoionisation à l'intensité du laser. Une fois la densité d'électrons critique ( $\sim 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ ) atteinte, la matière présente un comportement métallique, l'absorption devient significative suivi par l'augmentation progressive de la réflectivité avec l'augmentation de la densité électronique. La densité électronique n'augmente plus significativement une fois la densité critique dépassée en raison d'une chute de l'ionisation qui résulte d'une baisse d'intensité dû à l'augmentation de la réflectivité. Lorsque le comportement métallique est atteint, le volume ablaté augmente de façon linéaire par rapport à une augmentation de la fluence comme observé sur la Figure 37(a)-(b). À noter que plus la fluence du laser est élevée, plus la densité critique est atteinte tôt pendant l'interaction.

Lorsque l'impulsion est divisée en deux sous-impulsions indépendantes, la perte d'intensité se traduit par une baisse de l'efficacité d'ablation : le taux de photoionisation est diminué, et donc la production d'électrons libres et le dépôt d'énergie sont plus faibles. Cet effet est principalement lié au délai qui détermine l'intensité cumulée des deux sous-impulsions. Au fur et à mesure que le délai augmente, du délai nul où l'intensité cumulée est à son maximum et jusqu'à **1 ps**, la baisse d'intensité et d'efficacité d'ablation devient de plus en plus importante et, par conséquent, aussi bien la transmission optique que le volume ablaté, qui résulte de l'excitation électronique diminuent comme observés dans les Figure 37 et Figure 38. Pour un délai supérieur à **1 ps**, lorsque les deux sous-impulsions ne se chevauchent plus du tout, la transmission optique et le volume ablaté n'évoluent plus, car il n'y a plus de variation d'intensité.

La diminution de l'intensité cumulée des deux sous-impulsions avec l'augmentation du délai explique également l'augmentation du seuil de modification en fluence et d'ablation observée dans la Figure 37(c)-(d) et Figure 38(a)-(b). Par conséquent, plus le délai entre les impulsions est court, plus le volume ablaté est élevé.

Le phénomène de saturation observé au-dessus de  $20 \text{ J/cm}^2$  sur les Figure 38(a)-(b) est très probablement dû à l'ionisation de l'air. En effet, à une intensité maximale d'environ  $4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  [162], ce qui correspond à une fluence d'environ  $20 \text{ J/cm}^2$  pour une seule impulsion de **500 fs**, l'ionisation de l'air se produit car un plasma se forme, entraînant une diminution



significative de l'énergie de l'impulsion laser arrivant sur la cible. L'énergie perdue ne contribue pas à l'ablation de la matière. Il a également été montré qu'une défocalisation se réalise lorsque l'énergie d'ionisation de l'air est atteinte [163], modifiant les propriétés du faisceau ne serait-ce qu'en terme de diamètre mais aussi sur la propagation de celui-ci.

Les explications précédentes sont étayées par la modélisation du dépôt d'énergie. Les calculs ont été effectués avec le modèle décrit à la Section 2 dans la configuration de deux sous-impulsions, avec une distribution d'énergie de 50:50 entre les deux sous-impulsions et avec un délai allant de 0 à 5 ps comme dans les expériences. Les paramètres de modélisation sont les mêmes que ceux déterminés dans la configuration à impulsion unique (voir Tableau 7). La Figure 40 montre l'évolution de la densité d'énergie absorbée (Figure 40(a)) et de la densité électronique maximum atteinte normalisée par rapport à la densité électronique critique (Figure 40(b)) en fonction de la fluence totale et du délai entre les deux sous-impulsions. Sur la Figure 40(a), la densité d'énergie absorbée diminue avec l'augmentation du délai jusqu'à une valeur comprise entre 1 ps et 2 ps selon la fluence, et reste constante pour les délais plus importants. Sur la Figure 40(b), la densité d'électrons diminue rapidement avec l'augmentation du délai entre les impulsions jusqu'à 2 ps, puis n'évolue plus, car les électrons générés par la première impulsion ont entièrement recombinaisonnés. Pour tous les délais supérieurs à 2 ps, la densité électronique critique est atteinte à 6,5 J/cm<sup>2</sup>.

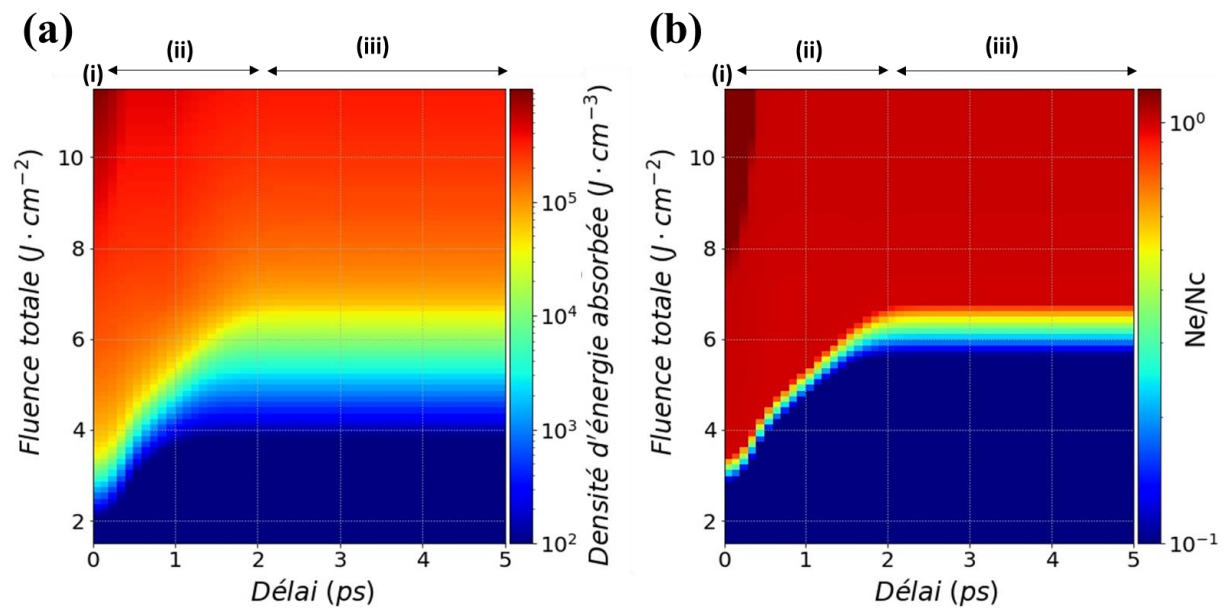


Figure 40. Calcul théorique (a) de la densité d'énergie absorbée et (b) de la densité électronique normalisée à la densité électronique critique en fonction de la fluence totale des deux sous-impulsions et du délai entre les impulsions. La longueur d'onde est de 1030 nm, la durée d'impulsion à FWHM est de 480 fs et le rapport en fluence entre les deux sous-impulsions est fixé à 50:50 comme dans les expériences.

Afin de comparer les prédictions théoriques et les résultats expérimentaux présentés dans la Figure 38(c)-(d), les extractions de la densité d'énergie absorbée de la Figure 40(a) en fonction du délai pour diverses fluences sont présentées dans la Figure 41. La température d'ébullition de la silice est atteinte pour une densité d'énergie déposée d'environ 4 kJ/cm<sup>3</sup>. Trois comportements particuliers peuvent être

identifiés : **(i)** un optimum de la densité d'énergie absorbée pour un délai nul, également observé sur la Figure 38(c)-(d), **(ii)** une baisse significative de la densité d'énergie absorbée pour un délai de l'ordre de 1-2 ps. Ce comportement est dû à la diminution de l'intensité cumulée maximale avec un délai croissant, et **(iii)** une stabilisation de la densité d'énergie absorbée à une valeur constante après un délai de 1-2 ps. Ces calculs théoriques confirment la baisse du taux d'ablation par rapport à l'augmentation du délai au-dessus de 1 ps, lorsque les deux sous-impulsions ne se chevauchent plus. Pour des délais compris entre 0,267 et 1 ps un comportement différent est observé entre les deux configurations en Figure 38(c)-(d). Cette différence de comportement n'est pas expliquée par le modèle. En effet, le modèle ne rend pas compte de l'état de polarisation et de son influence sur la photoionisation. Il sera vu dans la section 4.3 que les différences observés peuvent être expliquées par une coopération entre l'intensité résultante des deux sous-impulsions et de l'état de polarisation. Enfin, aux longs délais entre 1 ps et 5 ps, il n'y a plus de variation significative du volume ablaté (Figure 38(c)-(d)), conformément à ce qui est observé dans le modèle. Ce résultat peut surprendre, car le modèle développé ne rend pas compte de la création de niveau d'énergie STE dans la bande interdite par la première impulsion. Lesquels peuvent favoriser une nouvelle ionisation (voir Chapitre 1 Section 3.2 pour plus d'informations). Il semblerait ainsi que le rôle joué par les STE dans les conditions de paramètres laser utilisé (fluence, délai,...) ne soit pas significatif dans les processus d'ionisation pour observer leur influence sur la densité d'énergie laser absorbée et l'ablation.

Pour finir, quelle que soit la configuration étudiée, l'irradiation en impulsion unique permet et à la différence de deux sous-impulsions et quel que soit le délai, d'optimiser l'énergie absorbée et les volumes ablatés modulo l'influence de l'état de polarisation qui est vue ci-après.

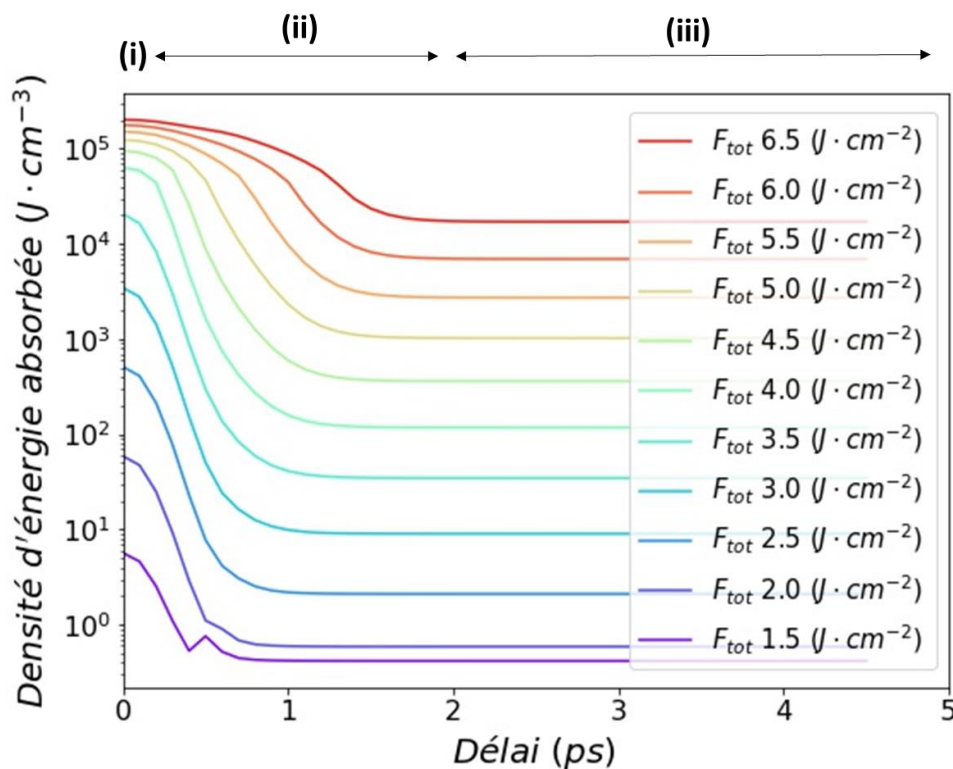


Figure 41. Calcul théorique de la densité d'énergie absorbée en fonction du pour diverses valeurs de fluence totale. La longueur d'onde est de 1030 nm, la durée d'impulsion à FWHM est de 480 fs et le rapport de fluence entre les deux impulsions est fixé à 50:50.

## 4.2. Influence de l'état de polarisation

Comme le montre la Figure 38(a)-(b), l'effet de la polarisation sur le volume ablaté est significatif pour un délai supérieur au délai de transition (défini comme le délai après lequel une chute du volume ablaté est observée pour chaque configuration de polarisation, voir section 3.2). Cet effet est observé pour l'irradiation laser à une ou deux sous-impulsions. L'influence de la polarisation sur le volume ablaté réside très probablement dans la différence des sections efficaces d'absorption entre la polarisation linéaire et la polarisation circulaire : le rapport des sections efficaces d'absorption à 6 photons pour la polarisation linéaire et la polarisation circulaire est d'environ  $\sigma_6^{\text{lin}}/\sigma_6^{\text{cir}} \approx 3,7$  (voir Tableau 8). Cette tendance est également soutenue par Reiss *et al.* [164] qui prévoient des sections efficaces plus grandes pour la polarisation linéaire que pour la polarisation circulaire pour un ordre multiphotonique élevé. Ye *et al.* [34] ont également obtenu une plus forte modification intra volume avec une polarisation linéaire par rapport à la polarisation circulaire. Tandis que la section efficace d'absorption à un photon pour un électron libre reste identique quelle que soit la configuration (voir annexe B). Ainsi, la polarisation linéaire entraîne un taux de photoionisation plus élevé, une densité d'électrons libres plus élevée et un dépôt d'énergie plus important par rapport à la polarisation circulaire. Cette hypothèse semble confirmée également en regardant le taux de transmission (Figure 36(a)-(b)).

Tableau 8. Valeurs de la section efficace d'absorption à 6 photons dans la silice fondue [36].

Section transversale d'absorption	Silice fondue
$\sigma_6^{\text{lin}}$ ( $\text{s}^{-1}\text{cm}^9/\text{W}^6$ )	$7,5 \times 10^{-47} \pm 0.5$
$\sigma_6^{\text{cir}}$ ( $\text{s}^{-1}\text{cm}^9/\text{W}^6$ )	$2,0 \times 10^{-47} \pm 0.5$

La configuration de la polarisation a également un effet sur la morphologie des cratères d'ablation. Cet effet est à peine visible pour les délais courts et devient assez important pour les délais longs. En effet, pour un délai de **1 ps**, la variation entre les configurations PLC et PCCR, dans les mesures du diamètre et de la profondeur, sont respectivement inférieure à **10 %** et d'environ **40 %**. La Figure 42(a)-(b) présente des profils 3D représentatifs de deux cratères obtenus avec un délai de **1 ps** pour une fluence totale de **9,8 J/cm<sup>2</sup>** dans les configurations respective PLC et PCCR. L'effet significatif du délai et de l'état de polarisation (voir section 4.3), sur la profondeur du cratère et dans une moindre mesure sur son diamètre, pourrait être attribué à l'intensité cumulative résultante des deux sous-impulsions qui est maximale au centre du faisceau et plus faible à sa périphérie (le recouvrement spatial des impulsions se produit sur une période plus longue au centre, par rapport à la périphérie). De plus, une augmentation de la fluence de **2 à 22 J/cm<sup>2</sup>** correspond à une augmentation de la profondeur du cratère d'un facteur neuf alors que le diamètre du cratère n'augmente que d'un facteur deux.

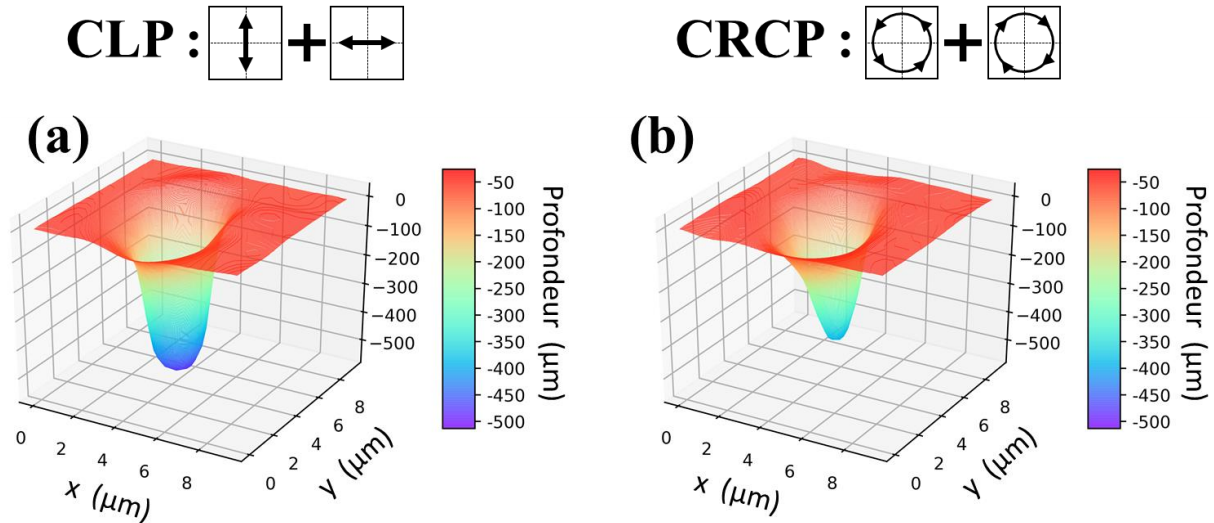


Figure 42. Profils 3D réalisés avec un microscope confocal 3D Leica DCM utilisant un objectif  $50\times/0,90$  avec la configuration PLC en (a) et la configuration PCCR en (b) avec un délai de 1 ps et une fluence totale de  $9,8\text{ J/cm}^2$ .

#### 4.3. Effet de la coopération entre le délai d'impulsion à impulsion et l'état de polarisation

Il a précédemment été vu que l'intensité cumulée des impulsions (Section 4.1) et l'état de polarisation (Section 4.2) influence sur les taux de transmissions et les volumes ablatés. Dans cette section, l'effet de coopération entre le délai et l'état de polarisation est analysé. Ces études sont réalisées, car l'état de polarisation et l'intensité cumulée des deux sous-impulsions peuvent coopérer. L'Annexe C présente l'état de polarisation résultant en fonction du délai en considérant les deux champs électriques des deux sous-impulsions.

Pour les deux configurations de polarisation, dès que les deux sous-impulsions commencent à se chevaucher temporellement, l'état de polarisation résultant est, en première approximation, elliptique, jusqu'à ce que le chevauchement soit complet. Comme le montre la Figure 38, le volume ablaté est similaire pour de courts délais pour les deux configurations de polarisation et présente une chute drastique avec l'augmentation du délai. Cette chute se produit après la valeur du délai de transition, c'est-à-dire après 133 fs dans la configuration PLC et 500 fs dans la configuration PCCR. Le délai de transition est plus court en configuration PLC qu'en configuration PCCR.

Pour la configuration PLC, le calcul de l'état de polarisation montre que le rapport d'ellipticité entre les deux sous-impulsions dépend de leur différence de phase alors que l'orientation de la polarisation dépend du rapport de l'amplitude. Cependant, la différence de phase ne peut être déterminée en raison de l'incertitude sur la définition de la position du délai nul qui est d'environ  $\pm 133\text{ fs}$ . Cette dernière valeur correspond à 40 cycles optiques. Elle peut donc prendre n'importe quelle valeur comprise entre 0 et  $2\pi$ . Ainsi, dans la configuration PLC, le rapport d'ellipticité ne peut pas être calculé avec précision. À noter que les bras de la ligne à retard ne sont pas asservis, la phase

peut donc varier tir à tir. Cependant, l'interférence entre les deux impulsions de **1030 nm** montre que les variations de phase dues au bruit ambiant sont infimes puisque les franges d'interférences ne varient pas entre chaque tir. Ainsi, les variations de phase dues au bruit peuvent être négligées.

D'autre part, dans la configuration PCCR, le calcul de l'état de polarisation montre que le rapport d'ellipticité dépend uniquement du rapport d'amplitude entre les deux sous-impulsions alors que l'orientation de la polarisation dépend de leur différence de phase. Dans ce cas, l'état de polarisation résultant pour un délai donné est principalement elliptique, sauf dans un intervalle temporel entre les deux sous-impulsions, où il tend à être linéaire (voir Figure 101 de l'Annexe C pour plus d'informations). Cet intervalle temporel devient plus grand à mesure que le délai diminue, c'est-à-dire que plus le chevauchement temporel est élevé entre les deux sous-impulsions et plus l'état de polarisation résultant est linéaire. L'existence d'un intervalle de temps où l'état de polarisation résultant est principalement linéaire a une contribution majeure sur le comportement de l'ablation, car à mesure que le délai entre les impulsions diminue, l'intensité cumulée augmente également. Ces deux effets agissent ensemble pour améliorer l'ablation à de courts délais, comme le montre la Figure 38(d). Contrairement à la configuration PLC, dans la configuration PCCR, ce phénomène de coopération est suffisamment important pour contrebalancer la perte d'intensité due à la séparation des impulsions et pour reporter le délai de transition à **500 fs**. Cet effet explique le fait que le volume ablaté soit plus élevé et le seuil de modification plus faible pour l'irradiation laser à double impulsion sans délai en configuration CRCP par rapport au cas d'une irradiation à impulsion unique, comme le montre respectivement la Figure 38(b) et la Figure 37(b). Par conséquent, l'effet de l'état de polarisation sur le volume ablaté dépend du délai.

Cet effet se retrouve également pour la configuration PLC et permet d'expliquer le comportement inverse observé dans le volume ablaté dans cette configuration où un minimum peut être observé pour des délais allant de **133 fs** à **1 ps**. La Figure 43 présente l'évolution du pourcentage de polarisation linéaire et de l'intensité cumulative maximale normalisée avec le délai pour les deux configurations de polarisation. Comme mentionné précédemment, en configuration PCCR, il est possible de définir avec précision un état de polarisation résultant pour toutes les valeurs de délai qui, avec l'évolution de l'intensité cumulée, apporte un effet coopératif favorable sur le volume ablaté (Figure 43(a)). En configuration PLC en raison de l'incertitude sur la différence de phase entre les deux sous-impulsions, il n'est pas possible d'obtenir une seule courbe théorique représentant les états de polarisation précis résultants pour chaque délai comme pour la configuration PCCR ; toutes les courbes possibles se trouvent dans la région bleue mise en évidence dans la Figure 43(b). Néanmoins, une courbe expérimentale présentant un minimum pour un délai de **267 fs** peut être tracée à partir des données expérimentales présentées à la Figure 38(c). En comparant les résultats sur les volumes ablatés pour les deux configurations de polarisation et pour la même intensité cumulative normalisée maximale, il est possible d'en déduire l'état de polarisation résultant pour la configuration PLC : le volume ablaté le plus faible est obtenu à l'intensité cumulative la plus faible et donc l'état de polarisation résultant est par conséquent essentiellement circulaire.

Il est intéressant de noter que l'effet dépendant du délai de l'état de polarisation sur le volume ablaté est cohérent également pour de longs délais entre les deux sous-impulsions pour lesquelles elles ne se chevauchent plus. La Figure 44 présente l'évolution du volume ablaté avec la fluence pour les longs délais (**1** et **5 ps**) dans les deux configurations de polarisation (PLC et PCCR) et pour l'irradiation mono-impulsion en polarisation linéaire et circulaire. Pour la configuration PCCR aux faibles délais, l'augmentation du volume ablaté est d'environ **1,2** plus élevée qu'en mono impulsion

de polarisation circulaire. Puis, le volume ablaté est d'environ de 2 et 3 fois plus important dans la configuration PLC pour un délai respectif de 1 ps et 5 ps comparé à la configuration PCCR.

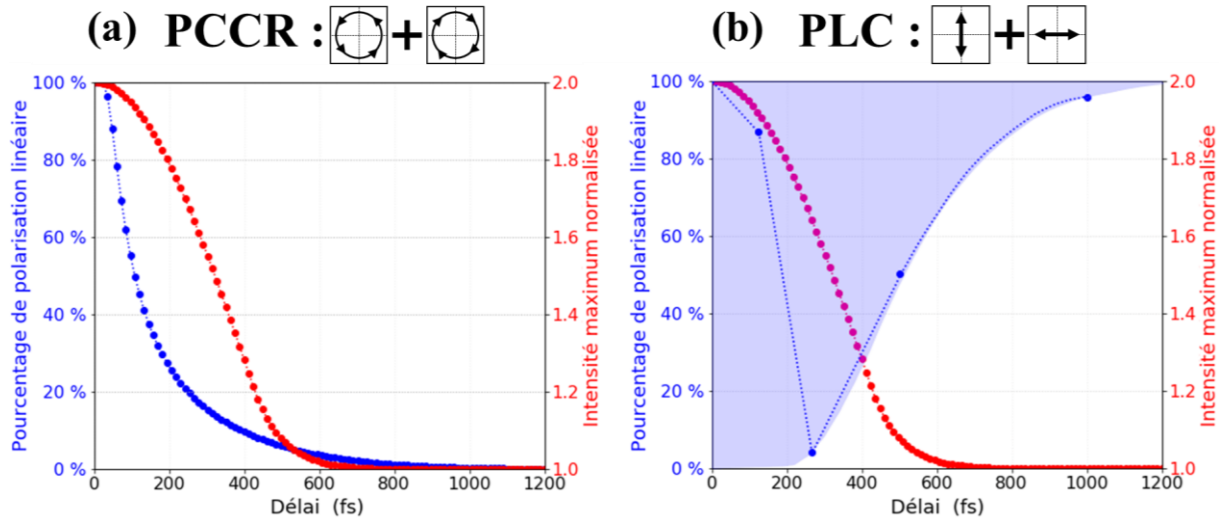


Figure 43. Évolution du pourcentage de polarisation linéaire moyen durant l'irradiation laser (ligne pointillée bleue) et de l'intensité cumulée normalisée maximale (ligne pointillée rouge) avec le délai pour (a) la configuration PCCR et (b) la configuration PLC. Les calculs sont effectués en utilisant l'Eq. (77).

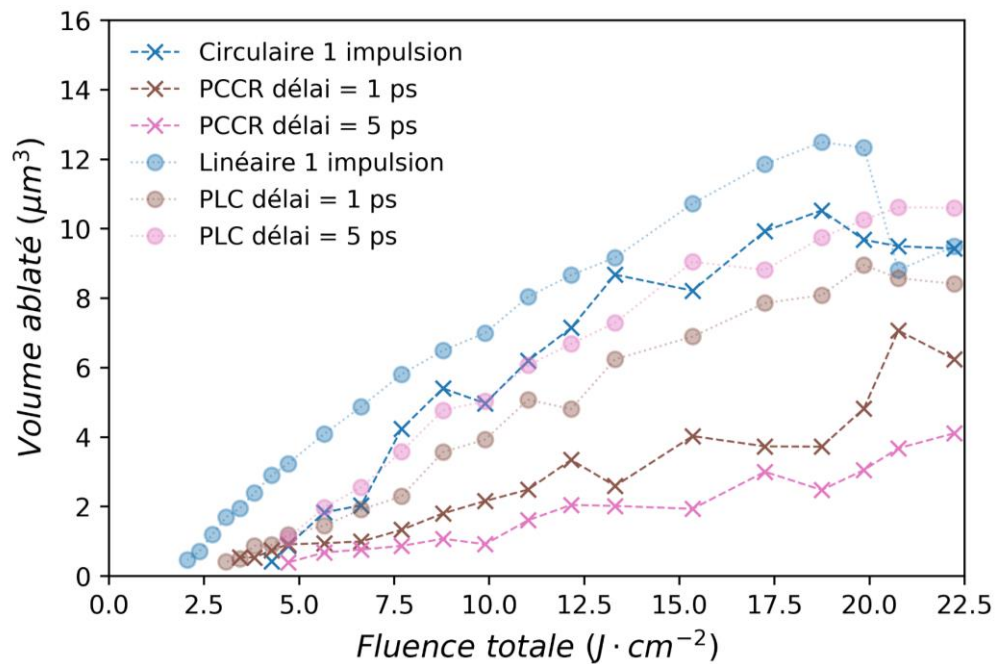


Figure 44. Volume ablaté en fonction de la fluence pour des délais de 1 et 5 ps d'impulsion à impulsion dans les deux configurations de polarisation (PLC, points pleins et PCCR, croix) et pour une irradiation mono-impulsion en polarisation linéaire (points pleins bleus) et circulaire (croix bleues). L'incertitude de mesure de la fluence tient compte à la fois de la taille du faisceau ( $\pm 0,3 \mu\text{m}$ ) et des incertitudes sur la mesure de la puissance ( $\pm 5\%$ ). L'incertitude sur le volume mesuré est de ( $\pm 10\%$ ).



## 5. Synthèse

Une irradiation par laser, à une seule longueur d'onde et à deux impulsions femtosecondes sur de la silice fondue dans les régimes de sous-ablation et d'ablation a été étudiée en vue d'une optimisation du processus d'ablation. Deux configurations de polarisation différentes sont comparées : la Polarisation Linéaire Croisée orthogonalement (PLC) et la Polarisation Circulaire Contre Rotative (PCCR). L'influence de la fluence totale et de l'état de polarisation a été étudiée pour les délais d'impulsion à impulsion dans la gamme de **0 - 5 ps**. Les résultats ont été discutés en termes de transmission optique, de seuil de modification en fluence et de volume ablaté.

Il est démontré que le délai a une influence majeure sur le volume ablaté, la modification et le seuil d'ablation. En effet, lorsque l'impulsion incidente est divisée en deux sous-impulsions, on observe une diminution de l'intensité maximale, du taux de photoionisation et du dépôt d'énergie. Ainsi, la tendance générale est une chute drastique du volume ablaté avec un délai croissant. Des calculs de la polarisation résultante des deux sous-impulsions qui se chevauchent ont également été effectués pour comprendre l'influence du délai et de la configuration initiale de la polarisation sur le volume ablaté. L'état de polarisation a également, dans une moindre mesure, une influence significative sur le volume ablaté : la polarisation linéaire conduit à une section efficace d'absorption non linéaire plus élevée comparée à la polarisation circulaire et donc à une optimisation de l'énergie déposée et de l'ablation. Il a été vu que l'état de polarisation varie au cours du temps et alterne au cours du temps entre une polarisation linéaire, circulaire ou elliptique entraînant un comportement intermédiaire. Pour de courts délais, lorsque les deux sous-impulsions se chevauchent, la polarisation résultante est en moyenne elliptique, ce qui conduit à un volume d'ablation similaire pour les deux configurations de polarisation. Cependant, dans cette gamme de délais (**0 - 500 fs**), il est démontré que dans la configuration CRCP, il existe des conditions spécifiques pour lesquelles l'effet de coopération entre l'état de polarisation linéaire résultant et l'intensité cumulative croissante conduit à une augmentation du volume ablaté. Par conséquent, l'effet de la polarisation sur le volume ablaté dépend du délai.

Dans l'ensemble, ces travaux expérimentaux ont montré que l'efficacité de l'ablation résulte de la combinaison de deux paramètres, l'état de polarisation et l'intensité cumulée qui dépend du délai entre les impulsions. Selon les conditions, ces deux paramètres pourraient être soit antagonistes, soit coopérants, entraînant respectivement une diminution ou une augmentation du volume ablaté. Des expériences réalisées avec un rapport de fluence de **70:30** ont également été effectuées. Les résultats expérimentaux sont similaires, mais les effets sur la transmission optique et le volume ablaté sont moins prononcés et proches de ceux d'une expérience d'irradiation par laser à impulsion unique. Bien qu'aucune amélioration significative du taux d'ablation n'ait été observée lors de l'irradiation à double impulsion par rapport au cas de l'irradiation à impulsion unique pour un rapport d'énergie de (50:50 ou 70:30), les résultats présentés permettent de mieux comprendre l'interaction laser-matière conduisant à l'ablation du matériau diélectrique et l'influence de paramètres clés, tels que l'état de polarisation et le délai entre les impulsions, sur le comportement d'ablation.

Les interprétations précédentes des résultats expérimentaux ont été étayées par un modèle qui prend en compte la dynamique des électrons induits par le laser et le dépôt d'énergie. Les paramètres du modèle ont été fixés en fonction des résultats de l'étude en impulsion unique : le volume ablaté a été comparé à la densité d'énergie absorbée théorique nécessaire pour chauffer le matériau cible jusqu'à la température d'ébullition de la silice fondue. Ces paramètres ont été conservés pour le cas de

l'irradiation laser à double impulsion. Les prédictions théoriques sont en bon accord avec les données expérimentales.

Les résultats montrent que pour les caractéristiques lasers utilisés qu'il est préférable d'utiliser une impulsion unique avec une polarisation linéaire dans le but d'augmenter le volume ablaté par impulsion laser.

Dans le but d'améliorer l'efficacité de l'ablation, les résultats présentés dans ce travail sont complétés par d'autres expériences, en utilisant une longueur d'onde plus courte pour la première impulsion (**515 nm**) d'une part, et une longueur d'onde plus longue pour la seconde impulsion (**1030 nm**) d'autre part dans le Chapitre 3. Contrairement aux résultats actuels en monocouleur où chaque sous-impulsion a les mêmes taux d'ionisation et de chauffage des électrons libres, nous pensons que l'utilisation d'une configuration bicolore permettra de gérer efficacement les deux processus et donc d'améliorer l'efficacité du dépôt d'énergie et de l'ablation. En effet, la sous-impulsion de courte longueur d'onde produira une grande densité d'électrons libres qui devraient être chauffés efficacement par la sous-impulsion de plus grande longueur d'onde.





# CHAPITRE 3. ABLATION DE LA SILICE FONDUE PAR DOUBLE IMPULSION LASER PICOSECONDE BI- CHROMATIQUE

---

## Sommaire

---

1. Dispositif expérimental et protocole.....	86
2. Modèle de dynamique électronique.....	92
3. Résultats en double irradiation à 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm) et 470 fs (515 nm) - 10 ps (1030 nm) .....	96
3.1. Transmission optique à 1030 nm et à 515 nm.....	97
3.2. Volume ablaté.....	102
3.3. Profondeur et profile d'ablation.....	109
4. Discussion.....	112
4.1. Double irradiation à 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm).....	114
4.2. Double irradiation à 470 fs (515 nm) et 10 ps (1030 nm).....	122
5. Synthèse .....	124

---

Toujours dans le but d'optimiser le dépôt d'énergie laser et l'ablation, dans ce chapitre, les résultats sur l'irradiation en impulsion par deux impulsions de couleurs différentes sont présentés. Deux configurations ont été étudiées. La première avec des sous-impulsions de **470 fs** à **515 nm** et de **1 ps** à **1030 nm** et la seconde, avec des sous-impulsions de **470 fs** à **515 nm** et **10 ps** à **1030 nm**. Comme vu précédemment dans la Section 3.3 du Chapitre 1 et à notre connaissance, l'étude de l'irradiation laser en double sous-impulsions pour optimiser le volume ablaté n'a jamais été investiguée pour ces caractéristiques d'impulsion. Les travaux rapportés dans la littérature avec des paramètres laser proche ne sont pas tous unanimes sur l'efficacité d'une telle mise en forme temporelle ; par ailleurs leur description est souvent incomplète. Dans ce qui suit est définie abusivement : impulsion rouge, une impulsion de longueur d'onde **1030 nm** et impulsion verte une impulsion de longueur d'onde **515 nm**.

L'objectif de ce travail est de mieux comprendre l'interaction laser matière avec deux sous-impulsions de couleur et de durée d'impulsion différente d'une part, et d'ouvrir la voie à l'amélioration du taux d'ablation d'autre part. L'utilisation de deux longueurs d'onde permet théoriquement de contrôler plus efficacement la dynamique électronique, car une longueur d'onde plus courte facilite la photoionisation et une longueur d'onde plus grande améliore le chauffage électronique [48,58,59,61]. L'ajout d'un délai approprié, c'est-à-dire pas trop court pour que les premiers électrons générés par photoionisation soient chauffés efficacement, et pas trop long pour qu'ils n'aient pas totalement recombinaison devrait permettre de tirer bénéfice des avantages de chacune des impulsions pour optimiser l'énergie laser déposée et augmenter les volumes ablatés. Les résultats sont étudiés en faisant varier le ratio en fluence entre les sous-impulsions, le délai ainsi que la durée de l'impulsion rouge. Les résultats sont discutés en termes de transmission optique dans le rouge et le vert uniquement ainsi qu'en termes de volume ablaté et de profondeur d'ablation.

Les résultats montrent une influence majeure de la longueur d'onde et du délai sur le volume d'ablation. Un modèle décrivant la dynamique des électrons et l'absorption d'énergie a été développé pour faciliter l'interprétation des résultats expérimentaux. Les paramètres du modèle ont été définis en fonction des résultats de l'étude en impulsion unique : le volume ablaté a été comparé à la densité d'énergie absorbée théorique nécessaire pour chauffer le matériau cible jusqu'à la température d'ébullition de la silice fondue [154]. Les paramètres du modèle obtenus en une impulsion dans le Chapitre 2 sont repris en les adaptant avec la loi d'échelle en longueur d'onde pour la section efficace de chauffage. Ces paramètres ont ensuite été conservés dans le cadre de l'étude de l'irradiation laser à double impulsion et il n'a pas été nécessaire de les réajuster de nouveau. Les résultats expérimentaux sont comparés aux courbes théoriques, ce qui permet de mieux comprendre les processus physiques sous-jacents.

Le document est organisé comme suit. Le dispositif expérimental ainsi que le protocole d'analyse sont décrits dans la Section 1, celui-ci diffère de celui présenté dans le Chapitre 2. Le modèle numérique est décrit dans la Section 2, il s'agit du modèle présenté dans le Chapitre 2 qui a été revu et adapté pour l'étude en impulsion doubles bi-chromatiques. Les analyses de la mesure de transmission sont décrites à la Section 3.1. Les mesures du volume ablaté effectuées sont présentées à la Section 3.2. La Section 3.3 présente les résultats des profondeurs d'ablation. Enfin, les Sections 4.1 et 4.2 sont consacrées respectivement à la discussion sur chacune des configurations : 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm) et 470 fs (515 nm) - 10 ps (1030 nm). Ce chapitre fait référence à 2 annexes. L'annexe D présente la technique utilisée pour mesurer l'intensité spatiale du faisceau sur cible pour des faisceaux bi-chromatiques. L'annexe E présente l'instrumentation et l'automatisation du poste de travail et du traitement des données.

## **1. Dispositif expérimental et protocole**

Le dispositif expérimental utilisé pour tous les tests comprend un laser femtoseconde, une ligne à retard, un élargisseur de faisceau, une platine de translation à 3 axes, une lentille de focalisation et une photodiode. Il diffère de celui présenté dans le Chapitre 2 par les optiques, le laser, le dispositif de focalisation et la ligne à retard.

La Figure 45 représente le schéma du dispositif expérimental utilisé pour tous les tests. La Figure 46 montre une photographie de la ligne à retard et de l'usinage sur cible. Le laser utilisé est un Tangor, laser femtoseconde hybride dopé Yb amplifié (oscillateur et pré-ampli fibré et un amplificateur solide). Le faisceau principal à la longueur d'onde de **1030 nm** est séparé en deux. Une partie est envoyée dans un module de conversion en fréquence, constitué d'un cristal BBO permettant de générer des impulsions laser de **515 nm** de forme gaussienne avec une largeur totale à mi-hauteur (FWHM) de **470 fs**. L'autre partie du faisceau est envoyée dans un compresseur jouant le rôle d'étireur permettant d'obtenir des impulsions laser de forme gaussienne avec un FWHM ajustable entre **1 et 10 ps**. Les durées sont mesurées à l'autocorrélateur.

Les principaux paramètres du laser utilisés sont résumés dans le Tableau 9. La fréquence de répétition varie de **200 kHz** à **2 MHz**. Néanmoins, un modulateur acousto-optique permet de générer des fréquences de répétition plus faibles jusqu'à **210 Hz** pour les essais. Les largeurs spectrales pour les impulsions de longueur d'onde centrale de **1030 nm** et **515 nm** sont respectivement de  $2,7 \pm 0,1$  nm et  $1,4 \pm 0,1$  nm à mi-hauteur (mesurées avec un spectromètre) correspondant à un temps de cohérence (calculée avec l'Eq. (52) du Chapitre 2) respectif de **1,3 ps** et **630 fs**.

La taille du faisceau focalisé est mesurée directement sur cible avec une caméra CMOS (de chez IDS). Le dispositif d'imagerie optique, utilisé pour les travaux du Chapitre 2 présenté en annexe A, ne permettant pas de mesurer des faisceaux de longueurs d'onde différentes. La mesure du faisceau se fait ici à l'aide d'une caméra CMOS ayant une taille de pixel de **1,67  $\mu$ m**. Cette caméra CMOS garantit un échantillonnage raisonnable pour la pertinence de la mesure de faisceaux de taille supérieure à **20  $\mu$ m**. En annexe D est présentée une mesure du faisceau ainsi que l'algorithme développé permettant de mesurer la taille des faisceaux. Les diamètres sont de  $20,7 \pm 0,9$   $\mu$ m à  $1/e^2$  pour le faisceau à **515 nm** et de  $22,6 \pm 1$   $\mu$ m à  $1/e^2$  pour le faisceau à **1030 nm**. Un effort important a été réalisé afin d'obtenir une taille de faisceau la plus proche possible pour les deux longueurs d'onde, ce qui permettra de faciliter l'analyse et l'interprétation des données et aussi de mieux comprendre les phénomènes physiques impliqués dans les expériences à double impulsion bi-chromatique.

L'ouverture numérique effective, calculée à partir de la taille du faisceau mesurée au point focal, est d'environ **0,06** et **0,03** respectivement pour le faisceau à **1030 nm** et à **515 nm**. Il est à noter que la zone de Rayleigh pour le faisceau vert est deux fois plus importante que le faisceau rouge.

Comme dans le Chapitre 2, une mesure de l'énergie est effectuée après l'échantillon grâce à une photodiode (modèle PH100-Si-HA-D0 de Gentec). L'incertitude sur la mesure de la puissance est toujours d'environ **5 %**.

Tableau 9. Paramètres laser.

	Longueur d'onde <b>1030 nm</b>	Longueur d'onde <b>515 nm</b>
Durée de l'impulsion	<b>1-10 ps</b>	<b>480 fs</b>
Fréquence de répétition utilisée	210 Hz	
Puissance moyenne maximale à 200 kHz sur cible	<b>38 W</b>	<b>17 W</b>

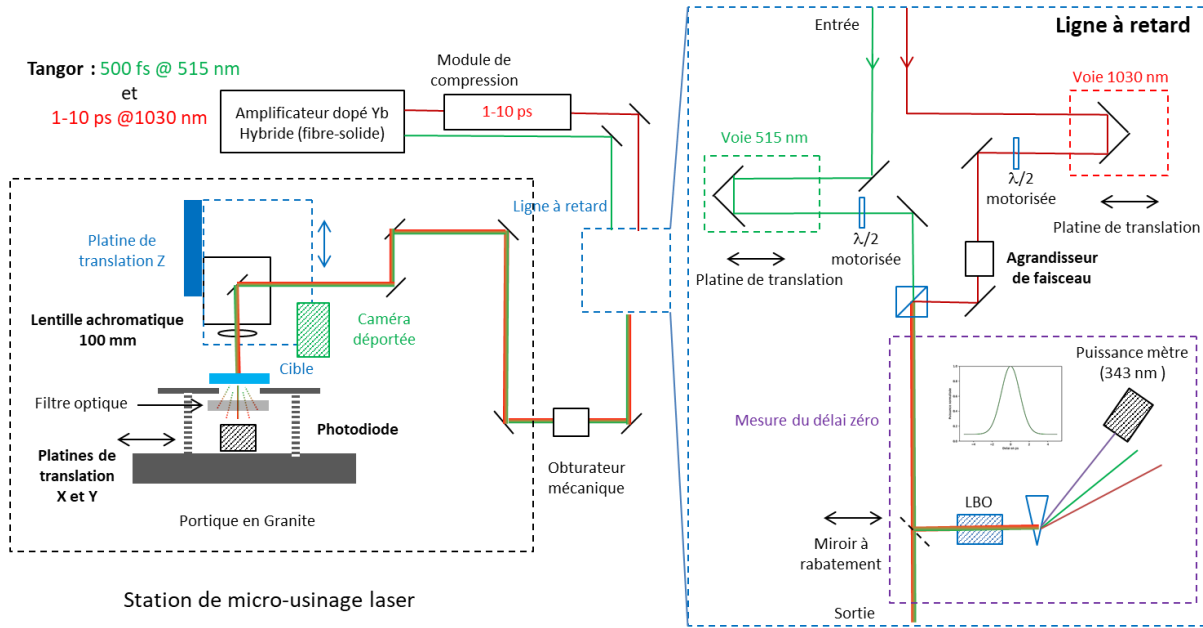


Figure 45. Schéma du banc optique laser avec la configuration générale (à gauche) et le détail des composants de la ligne à retard (à droite).

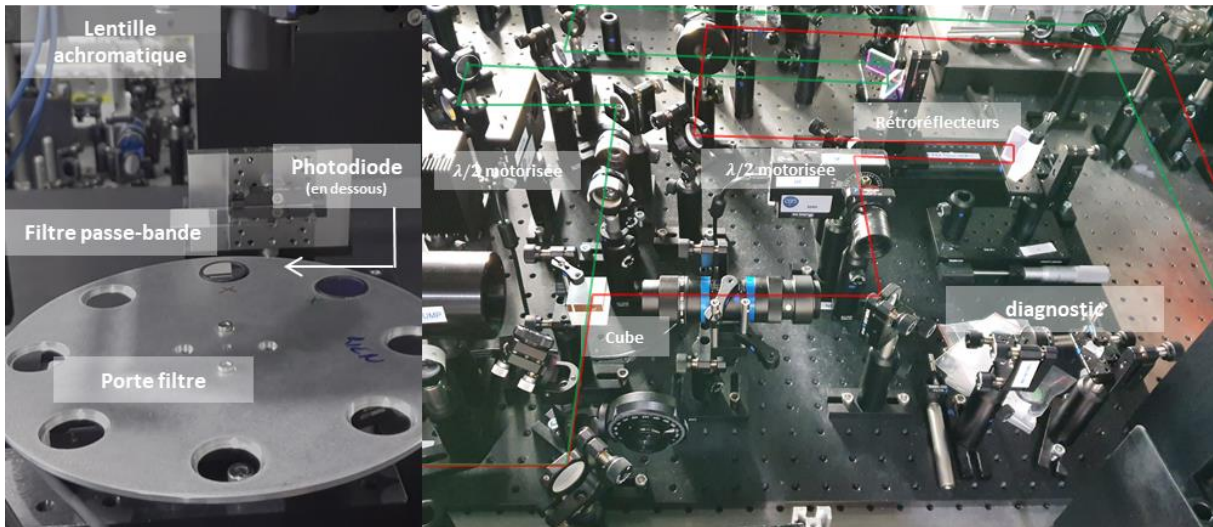


Figure 46. Photographie de la ligne à retard réalisée et de la focalisation du faisceau laser sur le matériau cible.

Une ligne à retard est utilisée pour recombinaison des deux faisceaux utilisés en deux sous-impulsions avec un délai contrôlé (Figure 45 et Figure 46). Dans la ligne à retard sont insérées des lames de phases demi-ondes motorisées sur chacune des voies permettant de fixer à la fois la fluence et le rapport d'énergie entre les deux sous-impulsions. Une platine de translation micrométrique est introduite sur la voie rouge permettant un réglage fin de la différence de chemin optique entre les deux sous-impulsions. Un agrandisseur de faisceau est inséré sur la voie rouge uniquement. Cet agrandisseur de faisceau a deux fonctions : (i) il permet en ajustant l'agrandissement de réajuster le diamètre du faisceau sur cible pour que celui-ci coïncide le plus possible au diamètre du faisceau

vert. (ii) Il permet en ajustant la collimation d'obtenir un unique plan de focalisation entre les deux longueurs d'onde. En effet, bien que la lentille de focalisation utilisée soit achromatique, il subsiste en réalité un écart (de plusieurs dizaines de micromètres) sur les distances de focalisation entre les deux longueurs d'onde utilisées. En jouant sur la collimation sur l'un des faisceaux, cela permet de corriger cet effet. Enfin, les deux faisceaux sont recombinaisonnés à l'aide d'un cube polarisant, après quoi les deux sous-impulsions sont polarisées linéairement et orthogonalement l'une par rapport à l'autre.

Deux grandes campagnes d'expériences ont été réalisées, une première avec des sous-impulsions de 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm) puis une deuxième en augmentant la durée d'impulsion rouge ; c'est-à-dire avec des sous-impulsions de 470 fs (515 nm) - 10 ps (1030 nm). Changer la durée d'impulsion rouge s'effectue en réglant un réseau dans le module de compression. Après quoi, les chemins optiques entre la voie rouge et la voie verte sont différents. Un réajustement des chemins optiques et un réaligement sur l'ensemble des optiques est donc nécessaire. Dans la configuration 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm) les délais d'impulsion à impulsion investigués sont variés entre  $-10$  à  $+10$  ps et échantillonnés sur neuf valeurs dans le cadre de l'étude :  $-10$  ;  $-1$  ;  $-0,5$  ;  $-0,267$  ;  $0$  ;  $0,267$  ;  $0,5$  ;  $1$  et  $10$  ps. La précision pour positionner la platine de translation correspondant au délai nul est évaluée à  $\pm 130$  fs. Dans la configuration 470 fs (515 nm) - 10 ps (1030 nm) les délais étudiés sont variés entre  $-20$  à  $+20$  ps et échantillonnés également sur neuf valeurs :  $-20$  ;  $-10$  ;  $-1$  ;  $-0,5$  ;  $0$  ;  $0,5$  ;  $1$  ;  $10$  et  $20$  ps. La précision pour positionner la platine de translation correspondant au délai nul est cette fois-ci évaluée à  $\pm 260$  fs.

Au cours de ces expériences, la colinéarité des deux faisceaux lors de la recombinaison est un point essentiel et elle doit être maintenue jusqu'à la cible. La caméra utilisée pour mesurer les faisceaux sur cible permet aussi de corriger la colinéarité des deux faisceaux. Aussi et comme dans l'expérience réalisée dans le Chapitre 2, le recouvrement spatial X, Y et Z doit être maintenu et ne pas varier lors de l'application du délai, c'est-à-dire lorsque la platine micrométrique bouge. Le réglage du délai nul est un autre point sensible pour ce type d'expérience. Une méthode analogue à la deuxième technique présentée dans le Chapitre 2 est ici utilisée. En effet, un nouveau cristal LBO est utilisé, il s'agit d'un cristal tripleur. Lorsque temporellement les deux faisceaux se chevauchent au maximum d'amplitude de leurs champs électriques respectifs (délai nul), le taux de conversion dans l'UV est maximisé. Un prisme placé après le cristal permet de séparer l'UV des faisceaux résiduels rouge et vert. Le maximum de puissance mesuré marque la position du délai nul. La précision pour positionner le délai nul est de  $130$  fs dans la configuration 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm), puis de  $260$  fs dans la configuration 470 fs (515 nm) - 10 ps (1030 nm). La différence de précision entre les deux configurations réside principalement dans le fait que pour une durée d'impulsion de  $10$  ps, l'intensité varie beaucoup moins rapidement que pour une impulsion de  $1$  ps. Ainsi, la sensibilité au taux de conversion est moindre et la précision pour déterminer le délai nul y est réduite.

Le rapport d'énergie entre les deux sous-impulsions est varié entre  $0$  et  $100$  %, quelle que soit la configuration utilisée et pour chaque délai étudié. La fluence totale est définie comme la somme des fluences de chacune des sous-impulsions. La fluence de chacune des sous-impulsions varie de  $0,8$  à  $21$  J/cm<sup>2</sup>, la fluence totale varie donc de  $1,6$  à  $42$  J/cm<sup>2</sup> (comme le représente la matrice sur la Figure 47) avec une incertitude qui tient compte à la fois de la taille du faisceau ( $\pm 0,6$   $\mu$ m) et des incertitudes sur la mesure de la puissance ( $\pm 5$  %). Les principaux paramètres d'usinage sont synthétisés dans le Tableau 10. Toutes les expériences ont été réalisées sur de la silice fondue de  $1$  mm d'épaisseur et le faisceau est toujours focalisé sur la surface de l'échantillon. Les échantillons de silice

fondue utilisés pour ces tests proviennent d'un autre fournisseur comparé aux échantillons utilisés dans le Chapitre 2.

Tableau 10. Principaux paramètres d'usinage.

Configuration		Ratio énergie	Vitesse platine (mm/s)	Diamètres faisceaux (1/e <sup>2</sup> )	Fluence totale d'usinage (J/cm <sup>2</sup> )
470 fs - 1 ps Délais (ps)	470 fs - 10 ps Délais (ps)				
-10; -1; -0,5; -0,267; 0; 0,267; 0,5; 1 et 10 ps	-20; -10; -1 ; -0,5; 0; 0,5; 1; 10 et 20 ps	Variable	10	20,7 @ 515 nm 22,6 @ 1030 nm	1,6 à 42 J/cm <sup>2</sup>

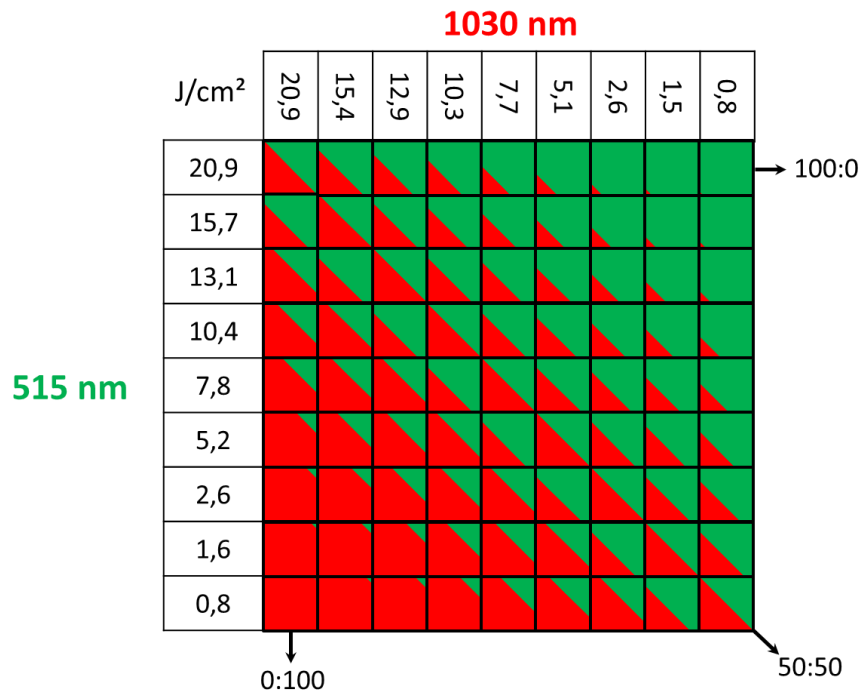


Figure 47. Matrice de fluence réalisée pour chacune des sous-impulsions pour chaque configuration.

Pour toutes les expériences, une fréquence de répétition de 210 Hz et une vitesse de balayage de 10 mm/s ont été utilisées afin de maintenir une distance de ~50 µm entre chaque cratère correspondant à chaque doublet d'impulsions successives. La taille du faisceau étant d'environ 21 µm, il n'y a pas de chevauchement spatial entre les doubles impulsions successives, c'est-à-dire que chaque cratère a été produit par un seul doublet d'impulsions.

La transmission et le volume ablaté sont respectivement mesurés et calculés pour chaque ensemble de paramètres par le même mode opératoire que celui présenté lors des essais présentés dans le Chapitre 2. Les mesures topographiques ont été effectuées à l'aide d'un microscope confocal Leica DCM 3D basé sur la technologie LED avec un objectif 50 ×/0,90. Le volume d'un cratère d'ablation a ensuite été calculé à partir de son profil 3D en intégrant le volume sous le niveau moyen de la

surface. Pour chaque cratère, quatre à six mesures ont également été prises en compte (comme dans le Chapitre 2) pour le calcul du volume d'ablation afin de réduire les incertitudes. L'incertitude sur le volume ablaté est environ de 10 %.

### Automatisation et instrumentation du poste de travail

La quantité des tests à réaliser est considérable. En effet, il s'agit d'effectuer pour chaque délai investigué 9 niveaux de fluence rouge et 9 niveaux de fluence verte. De plus, chaque essai est répété 3 fois pour faire une moyenne statistique permettant de réduire les artefacts de mesure, et pour permettre de réaliser pour un même jeu de paramètre laser, une mesure de transmission avec un filtre passe-bande dans le rouge, dans le vert, puis sans filtre. Pour chaque configuration, 9 délais ont été étudiés, portant le nombre de tests laser à 4400 environ lors des deux campagnes d'expériences avec autant de données en transmission, puis 6000 cratères à profiler et analyser. Il a donc été nécessaire d'automatiser et d'instrumenter les procédures d'usinage laser pour trois raisons principales : la fiabilité (éviter les erreurs de manip), la reproductivité des expériences et le gain de temps.

Toute l'instrumentation a été réalisée en développant des programmes dans le langage Python. L'instrumentation est réalisée à plusieurs niveaux et se décompose suivant trois grands modules comme illustrés sur la Figure 48. (i) Un module permet la gestion et la régulation du flux laser. (ii) Un deuxième module permet la mesure et l'acquisition de données. (iii) Un dernier module prend en charge les déplacements des platines. Le programme Python développé pour l'automatisation et l'instrumentation est plus largement détaillé dans la Section 1 de l'annexe E. L'automatisation du procédé laser a permis a minima de diviser d'un facteur dix le temps nécessaire pour réaliser ces expériences.

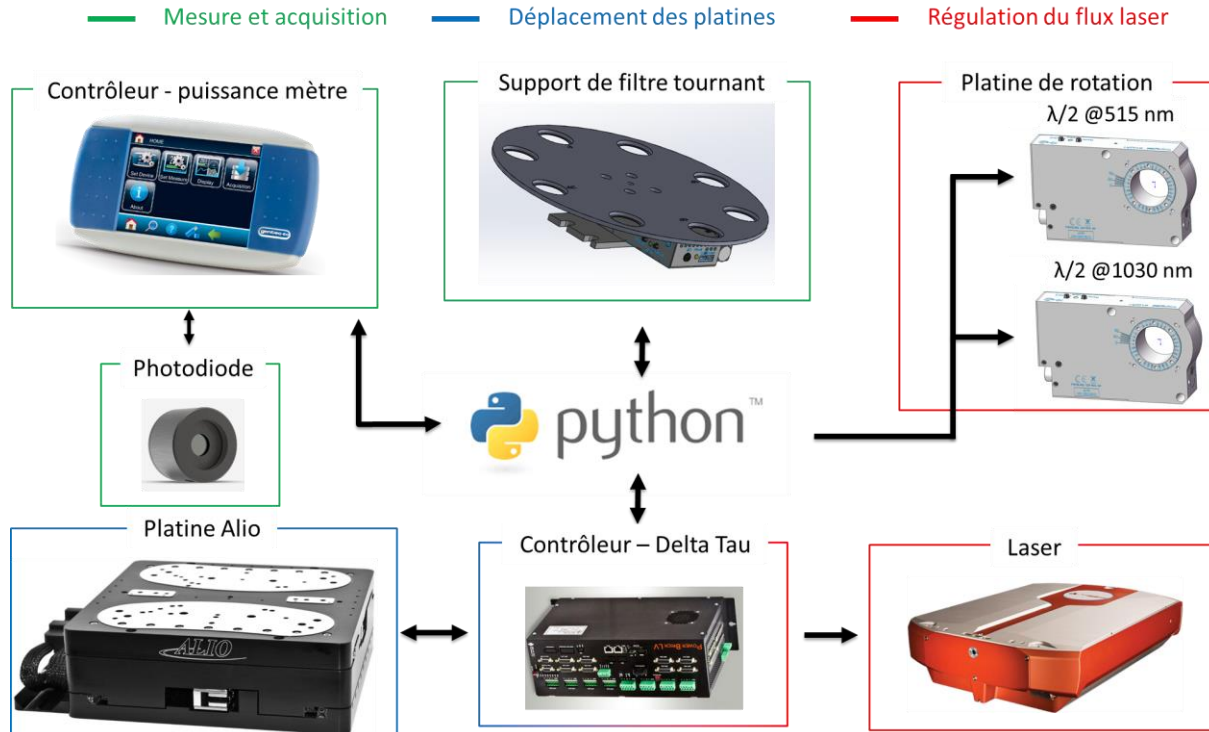


Figure 48. Différents instruments (contrôleur Maestro, contrôleur Alio, platines de rotation...) instrumentés en langage python pour l'automatisation des expériences.



## Automatisation de l'analyse des données

Aussi et comme pour les expériences du Chapitre 2, l'automatisation du traitement des résultats a permis de gagner beaucoup de temps mais aussi de réduire les erreurs humaines qui peuvent être insérées lors d'un traitement des données dit « manuel ». Comme dans le chapitre précédent, le système de vérification sous forme graphique permet de suivre le déroulement du processus d'analyse et permet de cibler rapidement les cas non traités par l'algorithme, les erreurs ou les éventuels points aberrants. Cela permet de s'affranchir des cas particuliers : poussière d'ablation présente, zone d'intégration incorrecte, une donnée manquante sur la transmission ou encore une mauvaise correction du défaut de planéité. Le programme Python développé pour le traitement des données est plus largement détaillé dans la Section 2 de l'annexe E.

## 2. Modèle de dynamique électronique

Cette section est consacrée à la modélisation de l'énergie laser absorbée pour étayer les interprétations des observations expérimentales. Le volume ablaté obtenu expérimentalement est interprété en terme de densité d'énergie de la même manière que ce qui a été fait dans le Chapitre 2. La Figure 49 illustre les différents processus impliqués dans l'ionisation avec deux longueurs d'onde (1030 nm et 515 nm) avec (i) la photoionisation, (ii) le chauffage des électrons, (iii) l'ionisation par impact et (iv) la recombinaison électronique. Comme vu dans la Section 1.2 du Chapitre 1, une longueur d'onde plus faible augmente le taux de photoionisation, car l'ordre multiphotonique est plus faible. Alors qu'une longueur d'onde plus importante chauffe plus efficacement les électrons. Ces différents processus sont modulés par l'intensité laser et dépendent aussi de la durée d'impulsion.

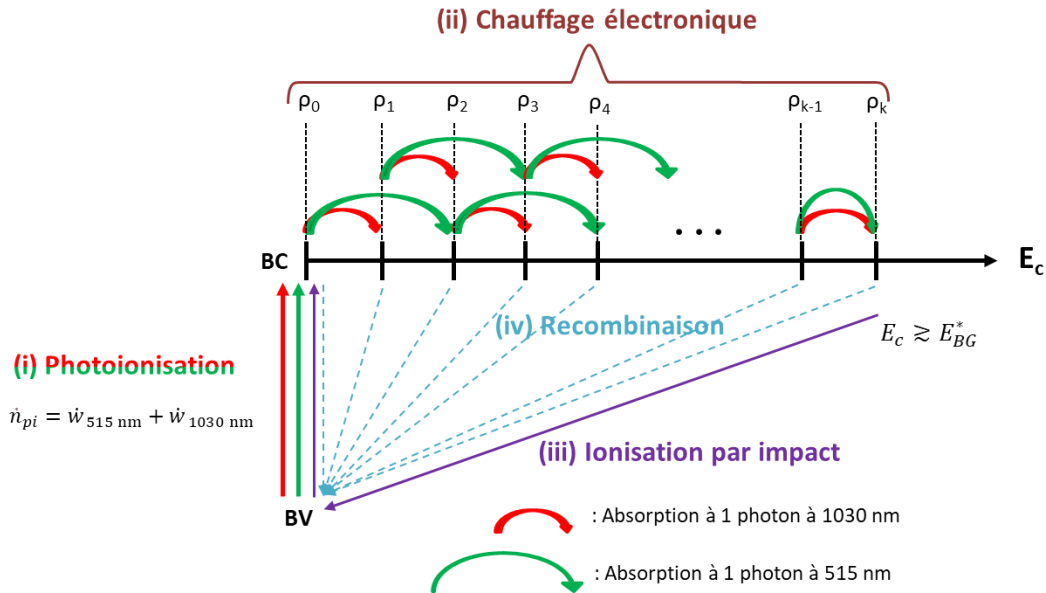


Figure 49. Ensemble des processus influençant la dynamique des électrons en bande de conduction pour une ionisation à deux longueurs d'onde. La dynamique comprend (i) la photoionisation, (ii) le chauffage électronique, (iii) l'ionisation par impact et (iv) la recombinaison électronique. La photoionisation est calculée avec l'expression de Keldysh, le chauffage électronique et l'ionisation par impact sur la base du modèle de Rethfeld qui a été modifié pour prendre en compte les deux couleurs.

Dans ce qui suit est défini abusivement : photon rouge, un photon de longueur d'onde **1030 nm** et photon vert un photon de longueur d'onde **515 nm**.

Le modèle développé se base sur celui présenté dans le Chapitre 2. Cependant, celui-ci a été adapté pour modéliser l'interaction avec deux impulsions laser de deux longueurs d'onde différentes. Les photons rouges de plus basses énergies imposent la discrétisation des niveaux d'énergie en bande de conduction, car ils ont une énergie deux fois plus faible que les photons verts. L'évolution des populations électroniques dans les différents états de conduction autorisés est donnée par le système d'équations suivant :

$$\begin{aligned} \dot{n}_e &= \sum_{k=0}^{k_{\max}} \dot{\rho}_k \\ \dot{\rho}_0 &= \left( \frac{n_v - n_e}{n_v} \right) (\dot{n}_{pi} + 2\tilde{\alpha} \rho_k) - (\sigma_{1030} + \sigma_{515})\rho_0 - \frac{\rho_0}{\tau_{STE}} \\ \dot{\rho}_1 &= \sigma_{1030}\rho_0 - (\sigma_{1030} + \sigma_{515})\rho_1 - \frac{\rho_1}{\tau_{STE}} \\ \dot{\rho}_2 &= \sigma_{515}\rho_0 + \sigma_{1030}\rho_1 - (\sigma_{1030} + \sigma_{515})\rho_2 - \frac{\rho_2}{\tau_{STE}} \\ &\vdots \\ \dot{\rho}_{k-1} &= \sigma_{515}\rho_{k-3} + \sigma_{1030}\rho_{k-2} - (\sigma_{1030} + \sigma_{515})\rho_{k-1} - \frac{\rho_{k-1}}{\tau_{STE}} \\ \dot{\rho}_k &= -\tilde{\alpha} \rho_k \left( \frac{n_v - n_e}{n_v} \right) + (\sigma_{1030} + \sigma_{515})\rho_{k-1} + \sigma_{515}\rho_{k-2} - \frac{\rho_k}{\tau_{STE}} \end{aligned} \quad (56)$$

Dans ce modèle, l'énergie des électrons en bande de conduction est répartie suivant une distribution à  $k_{\max}$  niveaux. Où  $\rho_k$  est la densité des électrons dans la bande de conduction au niveau d'énergie  $E_k = k\hbar\omega_{1030}$  avec  $k$  un nombre entier correspondant à divers états d'énergie dans la bande de conduction,  $E_0 = 0$  étant le niveau d'énergie le plus bas de la bande de conduction.  $E_{k_{\max}} = k_{\max}\hbar\omega_{1030}$  est le niveau énergétique maximal. Le nombre de niveau en bande de conduction est discrétisé en considérant les photons rouges de plus faible énergie, c'est-à-dire pour la longueur d'onde de **1030 nm**.  $\dot{n}_{pi} = \dot{w}_{515 \text{ nm}} + \dot{w}_{1030 \text{ nm}}$  est le taux de photoionisation à **515 nm** et à **1030 nm**, il est calculé à partir de l'expression de Keldysh (Eq. (2)) présentée dans la Section 1.2.1 du Chapitre 1. Il est à noter que ce modèle n'inclut pas l'ionisation multiphotonique comportant un mélange de photons rouge et vert. La photoionisation provenant ainsi du couplage entre l'impulsion rouge et verte dans le recouvrement temporel n'est pas calculée. La photoionisation sera alors sous-estimée lors du recouvrement temporel des sous-impulsions. Un modèle de Block permettrait de tenir compte de ce couplage entre les deux impulsions [165] mais ce développement dépasse les travaux de cette thèse.  $\tilde{\alpha}$  correspond à la fréquence de collision des électrons de conduction avec les électrons de valence.  $\sigma_{1030}$  et  $\sigma_{515}$  sont le taux d'absorption d'un photon pour un électron dans la bande de conduction à la longueur d'onde respective de **1030 nm** et de **515 nm**. Pour calculer les sections efficaces de chauffage, une loi d'échelle en  $\lambda^3$  est utilisée comme ce qui a été réalisé dans le Chapitre 2. L'avantage d'utiliser le modèle de Rethfeld à un modèle de taux permet de considérer un chauffage électronique successif en absorbant à tour de rôle des photons rouge et vert par exemple. L'absorption simultanée est supposée négligeable devant l'absorption monophotonique. Le terme  $n_v$

est la population initiale d'électrons dans la bande de valence,  $n_e = \sum_{k=0}^{k_{\max}} \rho_k$  représente la population totale d'électrons dans la bande de conduction. Le terme  $\left(\frac{n_v - n_e}{n_v}\right)$  permet de rendre compte du dépeuplement des électrons dans la bande de valence pendant l'ionisation.  $\frac{\rho_k}{\tau_{STE}}$  est le taux d'autopiégeage électronique. Pour maintenir un comptage des électrons en bande de conduction suivant une discrétisation de l'énergie de conduction sur l'énergie des photons rouges sur un niveau maximal  $E_{k_{\max}}$ , le photon vert ionisant la couche d'énergie  $E_{k_{\max}-1}$  est promu non pas dans la couche d'énergie  $E_{k_{\max}+1}$  mais  $E_{k_{\max}}$ .

Les hypothèses considérées dans la Section 2 du Chapitre 2, sont également valables dans le cas de cette étude. C'est-à-dire qu'il est supposé : une bande interdite parfaite, elle ne possède pas de défaut et il n'y a pas de création d'exciton autopiégé. La fréquence de collision électron-électron et le temps de recombinaison électronique sont supposés indépendants de la température et de la densité électronique en bande de conduction. Du fait des caractéristiques des impulsions (impulsions courtes), l'énergie a été déposée dans les électrons avant même que la thermalisation entre les électrons et la matrice n'opère dans la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm), ce qui n'est pas vérifié dans la configuration 470 fs (515 nm) – 10 ps (1030 nm).

Le système d'équations précédemment présenté dans l'Eq. (56) permet d'évaluer la densité électronique à tout instant. Connaître en tout temps la densité électronique permet de calculer la fonction diélectrique transitoire. Elle est calculée au premier ordre par la relation de l'Eq.(23) comme dans le Chapitre 2. Les indices optiques (réel et imaginaire) sont calculés à partir de la fonction diélectrique pour chacune des longueurs d'onde à une densité électronique donnée par l'Eq. (56). Le modèle de Drude est linéaire, il est donc possible de sommer la contribution des deux longueurs d'onde. Ainsi, la somme des dépôts d'énergies de chacune des contributions représente le dépôt d'énergie total. La densité d'énergie déposée est finalement calculée selon la relation suivante :

$$Q_{total} = 2 \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \left( \frac{I_{1030}(t)}{\delta_{1030}(t)} + \frac{I_{515}(t)}{\delta_{515}(t)} \right) \cdot dt \quad (57)$$

où  $\delta_{1030}$  et  $\delta_{515}$  sont les épaisseurs de peau donnée par l'Eq. (33) respectivement à la longueur d'onde 1030 et 515 nm calculé à partir de leur indice imaginaire respectif à 1030 et 515 nm suivant l'Eq. (27). L'intensité du laser  $I_{1030}(t)$  et  $I_{515}(t)$  sont respectivement évalués à partir des mesures expérimentales en considérant l'impulsion à 515 nm et à 1030 nm en utilisant l'Eq. (55) de la Section 2 du Chapitre 2. Du fait de la brièveté de l'impulsion femtoseconde, l'énergie a été déposée dans les électrons avant même que la thermalisation entre les électrons et la matrice n'opère. En supposant que toute l'énergie des électrons a été déposée sur une taille caractéristique à celle de l'épaisseur de peau [156] et en supposant que toute l'énergie est transférée aux phonons ; la température de la matrice est alors directement donnée par la densité d'énergie absorbée par les électrons  $Q_{total}$  à la fin de l'impulsion laser.

Les paramètres ajustés dans le cadre de l'étude de deux impulsions monochromatiques dans le Chapitre 2 ont été conservés dans cette étude et il n'a pas été nécessaire de les réajuster de nouveau. Uniquement la longueur d'onde et la durée d'impulsion ont été changées conformément aux durées mesurées expérimentalement. Le modèle comporte une dépendance en longueur d'onde sur l'ionisation et le chauffage électronique. La comparaison de la densité d'énergie absorbée nécessaire pour atteindre

la température d'ébullition permet de vérifier la concordance du modèle à l'expérience. La Figure 50 montre la densité d'énergie absorbée théorique en fonction de la fluence pour une irradiation par laser à impulsion unique obtenue pour l'impulsion à 515 nm à 470 fs et pour l'impulsion à 1030 nm à 1 ps. Les simulations sont uniquement réalisées dans la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm) puisque la configuration 470 fs (515 nm) – 10 ps (1030 nm) ne répond pas aux hypothèses du modèle (temps de thermalisation de la température électronique et ionique doit être supérieur à la durée d'excitation i.e à la durée d'impulsion). Les paramètres de simulation sont résumés dans le Tableau 11. La ligne horizontale rouge en pointillée indique la densité d'énergie absorbée nécessaire pour atteindre la température d'ébullition. Nous observons que la densité d'énergie absorbée souhaitée est atteinte pour des valeurs de fluence supérieures à  $2,1 \text{ J/cm}^2$  et  $4,9 \text{ J/cm}^2$  respectivement pour l'impulsion verte et rouge. Ces valeurs sont relativement proches des fluences seuil d'ablation obtenues expérimentalement d'environ  $1,5 \text{ J/cm}^2$  et  $4,5 \text{ J/cm}^2$  respectivement pour l'impulsion verte et rouge.

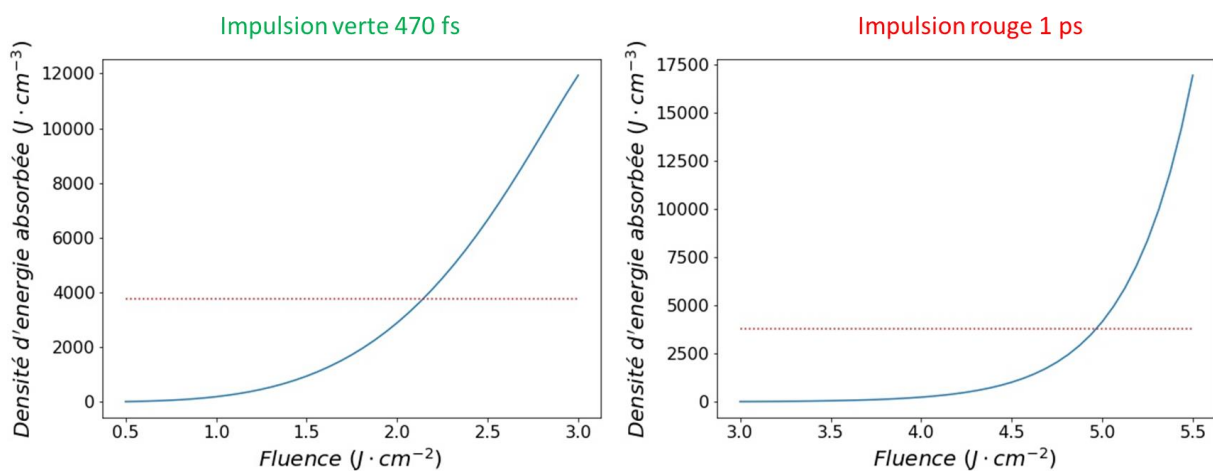


Figure 50. La ligne bleue représente la densité d'énergie théorique absorbée en fonction de la fluence pour une irradiation laser à impulsion unique obtenue avec les paramètres de modélisation fournis dans le Tableau 11 respectivement pour l'impulsion verte à gauche et rouge à droite. La ligne horizontale rouge en pointillée marque le seuil de la densité d'énergie absorbée nécessaire pour atteindre la température d'ébullition.

Tableau 11. Paramètres de simulation.

Bande interdite	7 eV
Temps d'autopiégeage moyen : $\tau_{STE}$	150 fs
Fréquence de collision des électrons de conduction avec les électrons de valence : $\tilde{\alpha}$	$10^{15} \text{ s}^{-1}$
Taux d'absorption d'un photon dans la bande de conduction à 1030 nm : $\sigma_{1030}$	$2,8 \times 10^{-6} \text{ m}^4/\text{V}^4\text{s}$
Taux d'absorption d'un photon dans la bande de conduction à 515 nm : $\sigma_{515}$	$0,35 \times 10^{-6} \text{ m}^4/\text{V}^4\text{s}$
Indice de réfraction linéaire à 1030 nm [161]	1,45
Indice de réfraction linéaire à 515 nm [161]	1,46
Densité électronique dans la bande de valence : $n_v$	$2 \times 10^{22} \text{ cm}^{-3}$
Densité électronique critique à 1030 nm	$1,05 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$
Densité électronique critique à 515 nm	$4,2 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$
Temps moyen de collision électronique	0,5 fs

Les seuils issus de la simulation numérique sont légèrement supérieurs à ceux trouvés dans l'expérience. Cependant, un meilleur accord est attendu en incluant correctement les effets de propagation laser, ce qui n'entre pas dans le cadre de ce travail.

Lorsque la densité critique est atteinte, le champ est atténué sur une distance de l'ordre de l'épaisseur de peau, ainsi son amplitude décroît. Pour une meilleure concordance avec les résultats expérimentaux et rendre compte d'une absorption sur l'épaisseur de peau, comme dans le chapitre précédent, l'amplitude du champ  $E_0$  est renormalisée comme  $\frac{E_0}{e}$  correspondant à la valeur du champ à une distance de l'épaisseur de peau lorsque la densité électronique critique est atteinte pour chacune des longueurs d'onde. Le réglage de ces paramètres dans le cas d'une irradiation laser à une seule impulsion a été maintenu pour étudier la configuration où les deux impulsions sont utilisées dans un même processus d'interaction.

### 3. Résultats en double irradiation à 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm) et 470 fs (515 nm) - 10 ps (1030 nm)

Cette section est consacrée à la présentation des résultats obtenus dans chacune des configurations : 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm) et 470 fs (515 nm) - 10 ps (1030 nm) en terme de transmission optique, volume ablaté et profondeur d'ablation. Des courbes en impulsions uniques ont été réalisées servant de référence pour comparer l'influence de deux sous-impulsions par rapport à une impulsion unique. Les délais négatifs correspondent au cas où l'impulsion à 1030 nm irradie en premier le matériau. La Figure 51 et la Figure 52 montrent l'intensité normalisée en fonction du temps pour un ratio en fluence entre les deux sous-impulsions de 50:50 respectivement dans la configuration 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm) et la configuration 470 fs (515 nm) - 10 ps (1030 nm) pour les différents délais étudiés. Les résultats expérimentaux sont dans un premier temps décrits et seront discutés dans un second temps dans la Section 4 lors de la discussion.

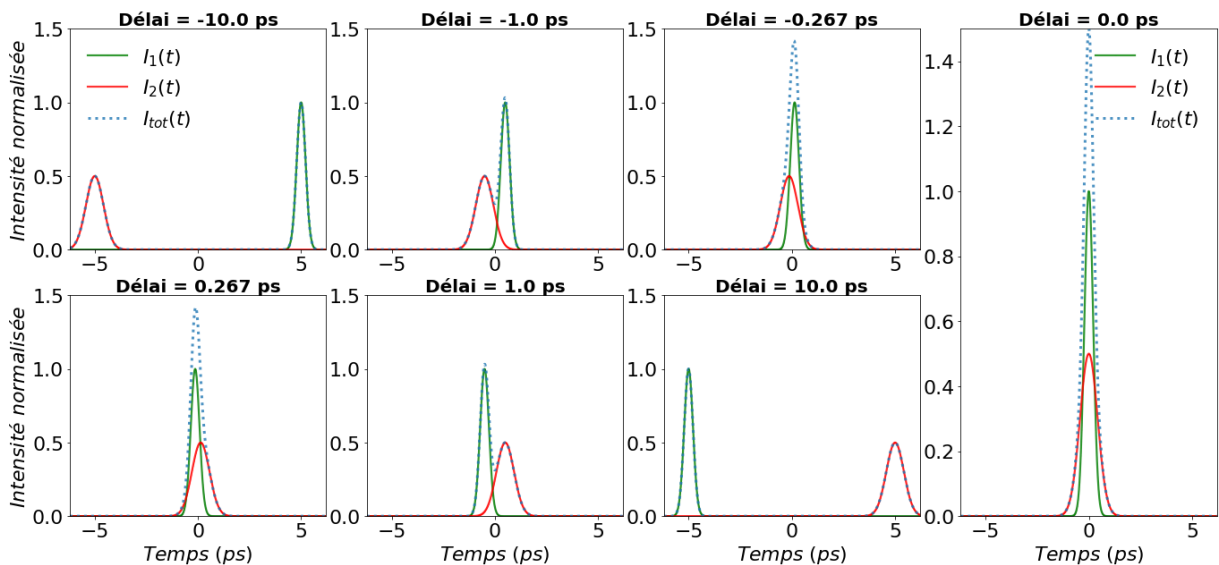


Figure 51. Intensité normalisée en fonction du temps pour un ratio en fluence de 50:50 entre les deux sous-impulsions dans la configuration 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm) pour différents délais.

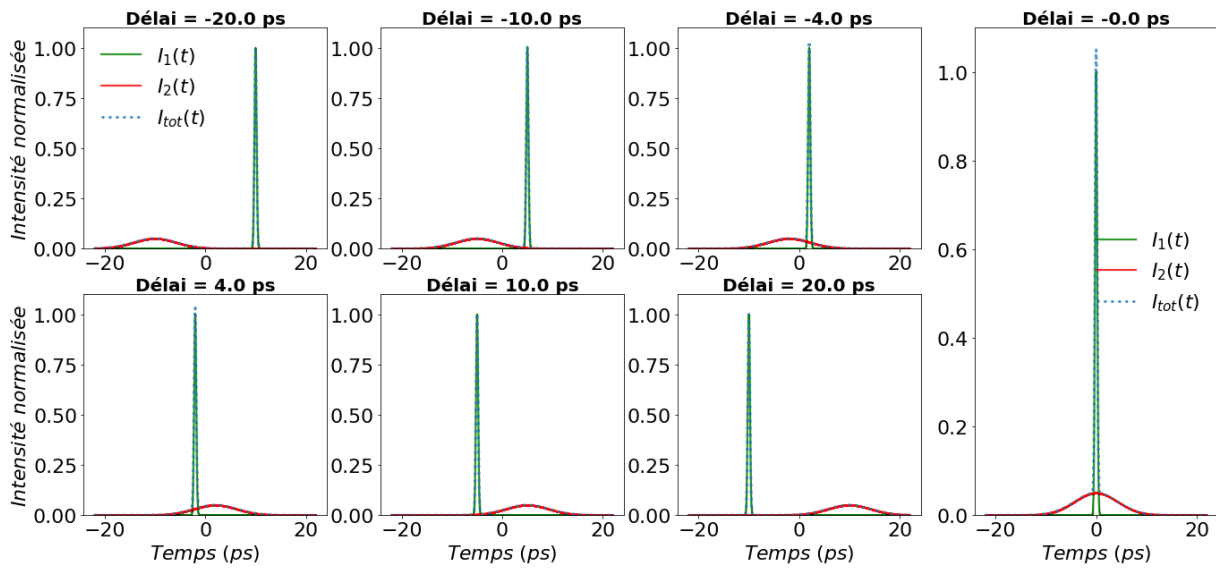


Figure 52. Intensité normalisée en fonction du temps pour un ratio en fluence de 50:50 entre les deux sous-impulsions dans la configuration 470 fs (515 nm) - 10 ps (1030 nm) pour différents délais.

### 3.1. Transmission optique à 1030 nm et à 515 nm

L'obtention de la transmission est réalisée à deux longueurs d'onde : 515 et 1030 nm en filtrant respectivement la transmission en amont du capteur via un filtre passe-bande dans le vert ou le rouge. Dans un premier temps, la transmission optique à 1030 nm uniquement est analysée, puis avec deux sous-impulsions pour un ratio fixe en fluence de 50:50 entre les deux sous-impulsions. Par la suite, la transmission à 515 nm uniquement est analysée en impulsion unique et lors de l'utilisation de deux sous-impulsions toujours avec une répartition en fluence de 50:50. Pour finir, et uniquement pour la configuration 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm), la transmission à 1030 nm sera présentée pour différents délais et différents ratios en fluence entre les deux sous-impulsions.

La Figure 53 représente la transmission à 1030 nm en fonction de la fluence totale pour une répartition en fluence de 50:50 entre les deux sous-impulsions. Différents délais sont affichés variants de  $-10$  à  $+10$  ps et  $-20$  à  $+20$  ps respectivement dans la configuration 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm) en Figure 53(a) et 470 fs (515 nm) - 10 ps (1030 nm) en Figure 53(b).

#### Transmission optique à 1030 nm en impulsion unique

Pour une impulsion unique de 1 ps à 1030 nm (Figure 53(a)) et à basse fluence, la transmission optique est de 94 %, puis celle-ci chute avec l'augmentation de la fluence et se stabilise après  $7,5 \text{ J/cm}^2$  autour de 80 %. Néanmoins, entre  $15 \text{ J/cm}^2$  et  $20 \text{ J/cm}^2$  une très légère remontée semble être observée. Cependant, il est important de rappeler que l'incertitude de mesure sur l'énergie est de 5%. Pour une impulsion unique de 10 ps à 1030 nm (Figure 53(b)), le comportement est différent. Une forte transmission optique est obtenue jusqu'à ce que celle-ci chute légèrement et se stabilise autour de 90 % pour des fluences supérieures à  $10 \text{ J/cm}^2$ . La différence de comportement est

principalement liée à la différence d'intensité crête entre les deux impulsions. Une explication plus détaillée de ces observations est donnée dans la Section 4. Le seuil de modification, d'ablation est atteint plus rapidement pour une impulsion plus courte.

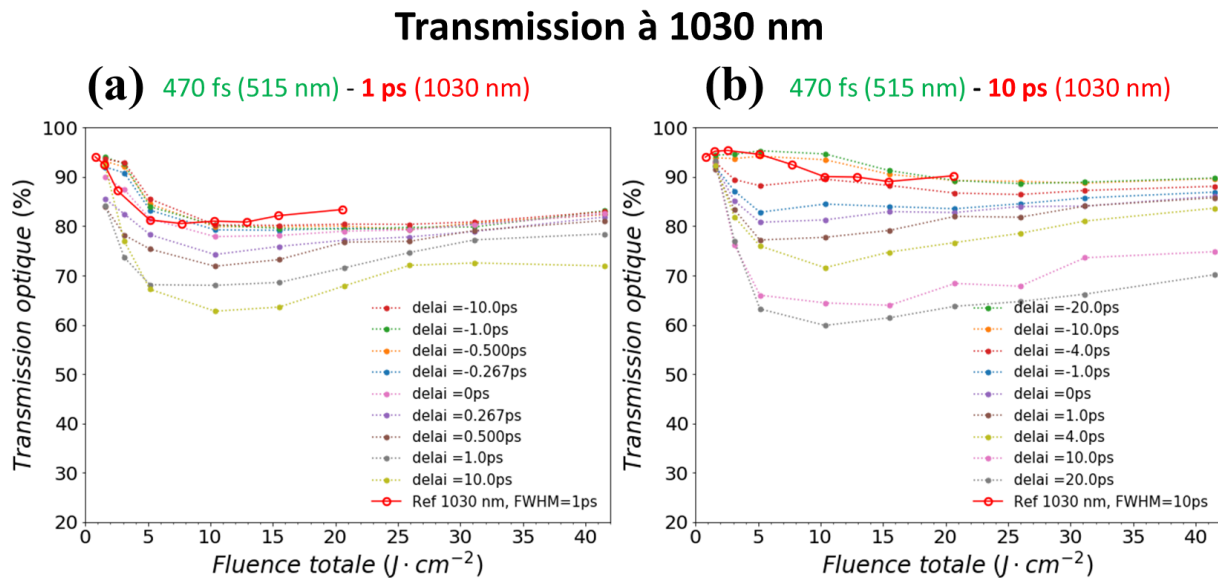


Figure 53. Transmission optique dans le rouge (1030 nm) en fonction de la fluence totale pour une répartition de la fluence de 50:50 entre l'impulsion verte et rouge. Les points complets correspondent aux données mesurées. Les lignes en pointillés sont des guides pour les yeux. L'incertitude de mesure sur la fluence tient compte à la fois de la taille du faisceau ( $\pm 0,6 \mu\text{m}$ ) et des incertitudes de mesure de la puissance ( $\pm 5 \%$ ).

Par comparaison avec la mesure de la transmission optique du Chapitre 2, dans les deux configurations une saturation de la transmission été observée autour de 20-30 % à forte fluence ( $> 10 \text{ J/cm}^2$ ). L'écart est donc très important avec les précédentes observations.

**Configuration 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm) avec un ratio en fluence de 50:50 (Figure 53(a))**

La transmission optique dans le rouge est supérieure à la courbe de référence lorsque deux sous-impulsions sont utilisées aux délais négatifs, c'est-à-dire que l'impulsion rouge arrive avant l'impulsion verte. À l'inverse, lorsque les délais sont positifs (l'impulsion rouge arrive après l'impulsion verte) et au fur et à mesure que le délai augmente, la transmission optique dans le rouge chute. La baisse des transmissions peut-être attribuées à une augmentation de l'absorption ou de la réflectivité à la longueur d'onde 1030 nm ou à de la diffusion. Les données sur les volumes ablatés permettront de déterminer s'il s'agit d'absorption. À noter qu'il n'y a pas de symétrie autour du délai nul. L'absence de symétrie montre indéniablement que l'impulsion verte joue un rôle précurseur lorsque celle-ci est suivie de l'impulsion rouge, notamment sur les propriétés optiques du matériau. Pour des délais positifs et pour des fluences supérieures à  $10 \text{ J/cm}^2$ , la transmission optique réaugmente.



### Configuration 470 fs (515 nm) - 10 ps (1030 nm) avec un ratio en fluence de 50:50 (Figure 53(b))

Lorsque la durée d'impulsion rouge est de 10 ps, pour les délais négatifs et tant qu'il n'y a pas de recouvrement entre les deux sous-impulsions, la transmission optique dans le rouge reste très proche et parfois légèrement au-dessus de la courbe de référence. Dès que le recouvrement temporel s'effectue à partir d'un délai de  $-4$  ps, et jusqu'au délai positif, la transmission optique dans le rouge chute graduellement avec l'augmentation du délai. De plus, et comme précédemment il n'y a pas de symétrie autour du délai nul. Aussi, pour des délais positifs et pour des fluences supérieures à  $10 \text{ J/cm}^2$ , la transmission optique réaugmente, mais l'augmentation est moins significative que dans la configuration 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm).

### Transmission optique à 515 nm dans la configuration 470 fs (515 nm) - 1 ps et 10ps (1030 nm) avec un ratio de fluence de 50:50

La Figure 54 représente la transmission dans le vert en fonction de la fluence totale avec une répartition en fluence de 50:50 entre les deux sous-impulsions pour différents délais d'impulsion à impulsion allant de  $-10$  à  $+10$  ps et  $-20$  à  $+20$  ps respectivement dans la configuration 470 fs (515 nm) - 1 ps et 470 fs (515 nm) - 10 ps (1030 nm). Quelle que soit la configuration, les caractéristiques de l'impulsion verte restent inchangées (durée d'impulsion, longueur d'onde, etc.). Pour une impulsion unique, la transmission optique est d'environ 50 % à la plus basse fluence, puis elle reste autour de 30-40 % pour des fluences plus importantes. Des fluences moins importantes pour retrouver des taux de transmission autour de 94 % n'ont pas été étudiées, car le régime d'ablation est la zone d'intérêt. Pour des fluences supérieures à  $10 \text{ J/cm}^2$ , la courbe en transmission remonte.

## Transmission 515 nm

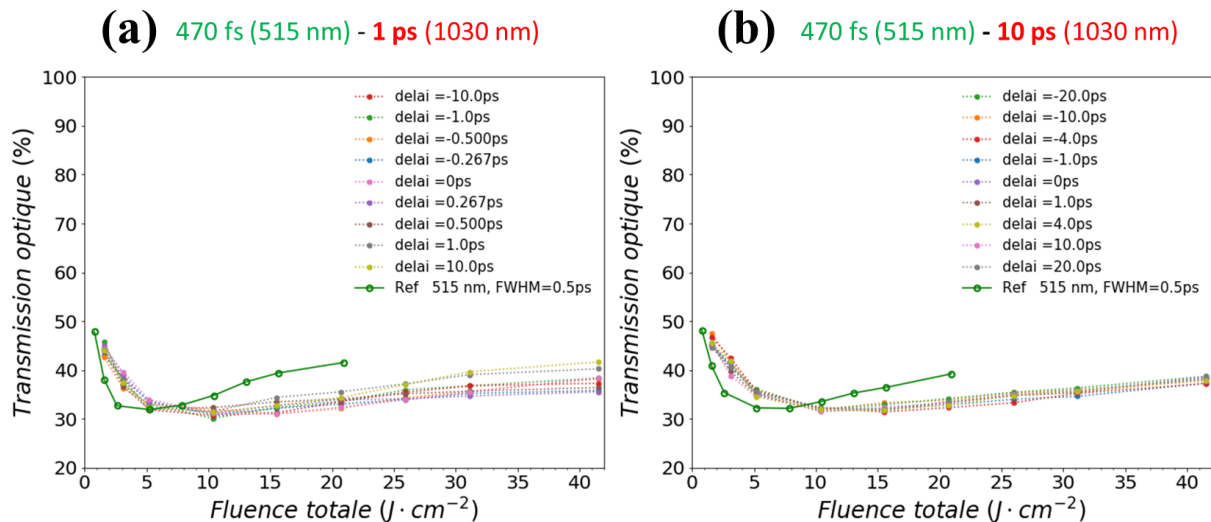


Figure 54. Transmission optique dans le vert (515 nm) en fonction de la fluence totale pour une répartition de la fluence de 50:50 entre l'impulsion verte et rouge. Les points complets correspondent aux données mesurées. L'incertitude de mesure de la fluence tient compte à la fois de la taille du faisceau ( $\pm 0,6 \mu\text{m}$ ) et des incertitudes sur la mesure de la puissance ( $\pm 5 \%$ ). Les lignes en pointillés sont des guides pour les yeux.



Pour deux sous-impulsions et quelle que soit la durée d'impulsion rouge, les données en transmission sont sensiblement identiques. L'impulsion rouge n'influe donc pas sur l'évolution des propriétés optiques dans le vert, même lorsque les deux sous-impulsions se recouvrent temporellement. Une observation remarquable pour tous les délais est le croisement des courbes vers  $7,5 - 10 \text{ J/cm}^2$  par rapport à la courbe de référence, il s'agit d'une homothétie d'un facteur 2, car les données en double impulsion sont présentées pour un ratio en fluence de 50:50 entre les deux sous-impulsions.

### **Transmission optique à 1030 nm pour différents ratios en fluence en configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm)**

La Figure 55 représente la transmission optique dans le rouge en fonction de la fluence totale pour différents ratios en fluence entre les sous-impulsions pour trois délais :  $-1 \text{ ps}$  (Figure 55(a)) ;  $0 \text{ ps}$  (Figure 55(b)) et  $+1 \text{ ps}$  (Figure 55(c)) dans la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm). Les fluences des impulsions vertes et rouges sont respectivement reportées en légende et marquées par un gradient de couleur vert et rouge. Pour les délais négatifs et lorsque la proportion de fluence rouge est proche des fluences seuils, la courbe de transmission est au-dessus de la courbe de référence. Puis un comportement similaire à la courbe de référence est observé pour des fluences rouges plus importantes et quelle que soit la fluence verte. Au délai nul et quel que soit le ratio utilisé, les courbes de transmission sont très proches de la courbe de référence. Puis, pour des fluences rouges plus importantes, les courbes sont environ 5 % en dessous de la courbe de référence. Pour finir, lorsque le délai est de  $+1 \text{ ps}$  et quel que soit le ratio utilisé, la transmission (à 1030 nm) est inférieure à la courbe de référence. Toujours pour un délai de  $+1 \text{ ps}$ , à une fluence totale fixée, lorsque la proportion de fluence rouge augmente par rapport à la fluence verte, les transmissions optiques sont plus importantes. Ces tendances observées au délai négatif et positif sont représentatives de tous les délais étudiés mais également transposables dans la configuration 470 fs (515 nm) – 10 ps (1030 nm), ces données ne sont donc pas présentées par souci de concision. Les données de transmission dans le vert ne sont pas présentées, car le ratio n'influe pas sur la transmission optique dans le vert comme précédemment constaté pour divers délais d'impulsion à impulsion.

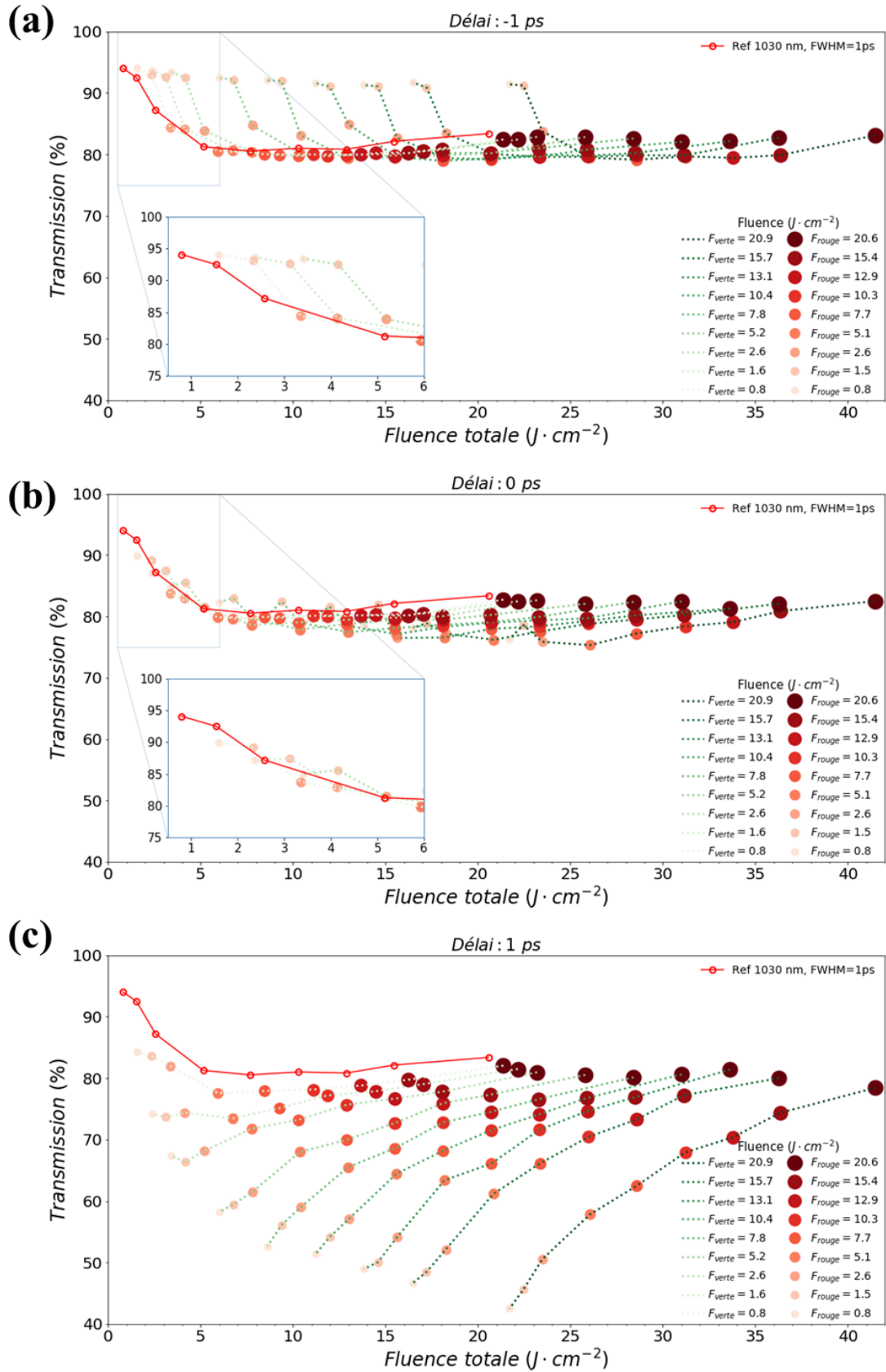


Figure 55. Transmission optique dans le rouge (1030 nm) en fonction de la fluence totale dans la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm) pour trois délais d’impulsion à

impulsion :  $-1$  ps en (a),  $0$  ps en (b) et  $+1$  ps en (c). L'incertitude de mesure de la fluence tient compte à la fois de la taille du faisceau ( $\pm 0,6 \mu\text{m}$ ) et des incertitudes sur la mesure de la puissance ( $\pm 5 \%$ ). Les points complets correspondent aux données mesurées. Les lignes en pointillés sont des guides pour les yeux.

Pour résumer, les données en transmission ne sont pas toutes présentées. Les données en transmission dans le rouge montrent qu'il y a une influence du délai sur le taux de transmission dans les deux configurations étudiées. Cependant, le taux de transmission dans le vert reste inchangé et n'est pas affecté quels que soient les configurations et les délais utilisés. De plus, pour différents ratios de fluence entre les deux sous-impulsions et à fluence totale fixe, les données montrent une influence du délai et du ratio sur les transmissions optique dans le rouge uniquement.

### 3.2. Volume ablaté

Dans cette section sont reportés les volumes ablatés pour chacune des configurations. Les différences observées sous irradiation en impulsion unique sont dans un premier temps comparées à l'irradiation avec deux sous-impulsions. L'influence de différents délais et ratios en fluence dans l'utilisation de deux sous-impulsions est comparée dans un second temps. Comme pour la transmission, les résultats expérimentaux sont dans un premier temps décrits et seront discutés dans un second temps dans la Section 4 lors de la discussion.

La Figure 56 représente le volume ablaté en fonction de la fluence pour une irradiation en impulsion unique pour chacune des configurations. Le seuil d'ablation en fluence est obtenu autour de  $1,5 \text{ J/cm}^2$  pour l'impulsion verte. Il est de  $4,5 \text{ J/cm}^2$  avec l'impulsion rouge pour une durée d'impulsion de  $1$  ps et d'environ  $5,2 \text{ J/cm}^2$  lorsque la durée d'impulsion est de  $10$  ps.

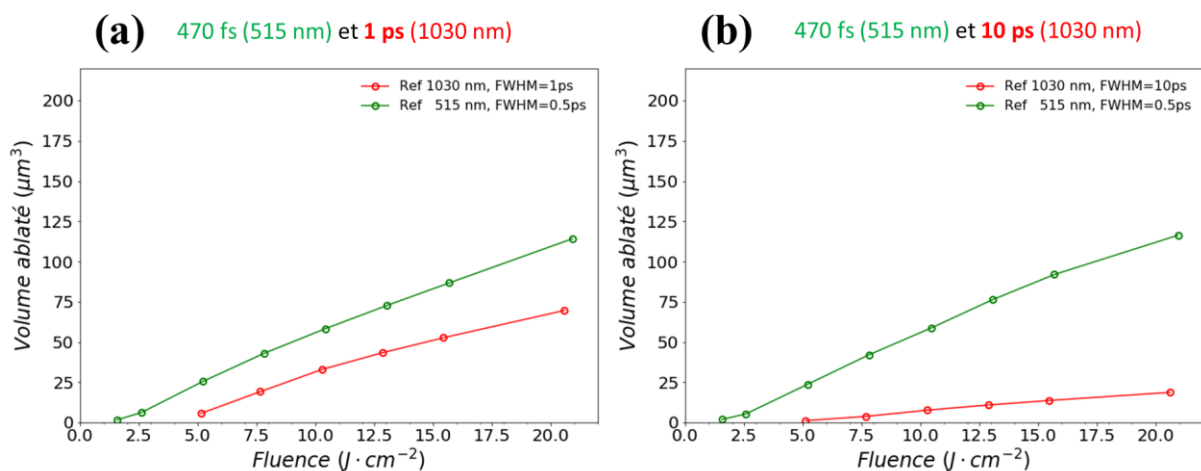
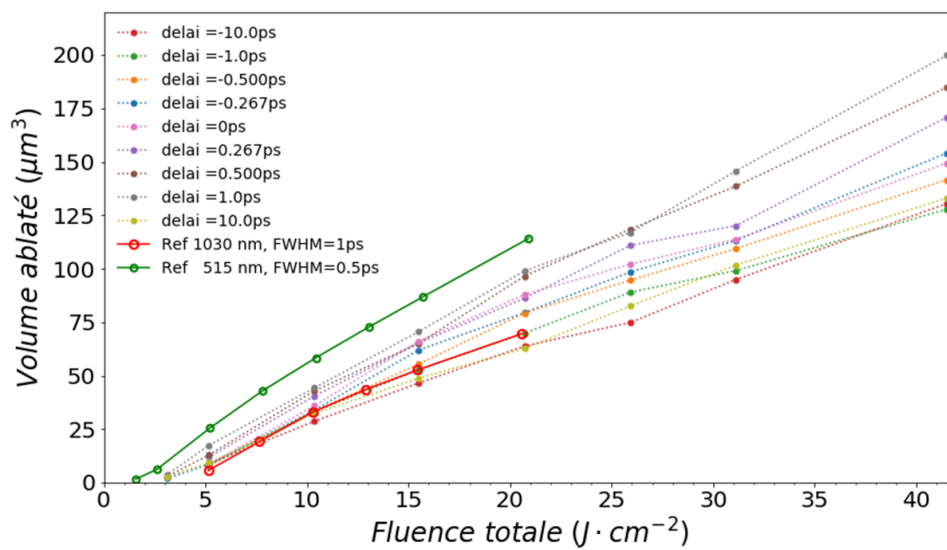


Figure 56. Volume ablaté en fonction de la fluence pour l'irradiation de la silice fondue en surface avec une impulsion unique de 470 fs (515 nm) et 1 ps (1030 nm) en (a) et 470 fs (515 nm) et 10 ps (1030 nm) en (b). L'incertitude de mesure de la fluence tient compte à la fois de la taille du faisceau ( $\pm 0,6 \mu\text{m}$ ) et des incertitudes sur la mesure de la puissance ( $\pm 5 \%$ ). L'incertitude sur le volume mesuré est de ( $\pm 10 \%$ ). Les points correspondent aux données mesurées.

Il est à noter que les résultats sont parfaitement reproductibles. En effet, la courbe d'ablation en impulsion verte unique (courbe de référence) est réalisée deux fois pour chacune des configurations et est superposable. Enfin, les courbes croissent quasiment linéairement avec l'augmentation de la fluence, puisque les coefficients de corrélation sont proches de **0,96** pour une régression d'équation  $aF^c + b$  avec  $c = 1$ . Lorsque le paramètre  $c$  est laissé libre, un coefficient de corrélation de **0,99** est obtenu avec un exposant d'environ **0,82**.

La Figure 57 représente le volume ablaté en fonction de la fluence totale pour une répartition en fluence de 50:50 entre les deux sous-impulsions et pour différents délais allant de  $-10$  à  $+10$  ps et de  $-20$  à  $+20$  ps respectivement dans les configurations 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm) et 470 fs (515 nm) - 10 ps (1030 nm).

**(a)** 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm)



**(b)** 470 fs (515 nm) - 10 ps (1030 nm)

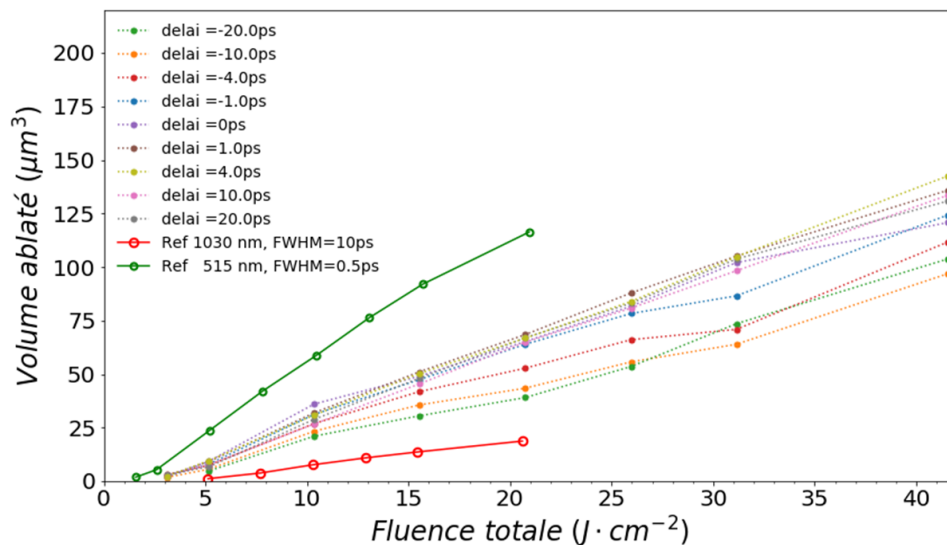


Figure 57. Volume ablaté en fonction de la fluence pour l'irradiation de la silice en surface avec une impulsion unique (trait plein) et pour deux sous-impulsions avec différents délais

dans la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm) en (a) et 470 fs (515 nm) – 10 ps (1030 nm) en (b). Dans les deux configurations, le ratio en fluence est de **50:50**. Les points complets correspondent aux données mesurées. L'incertitude de mesure de la fluence tient compte à la fois de la taille du faisceau ( $\pm 0,6 \mu\text{m}$ ) et des incertitudes sur la mesure de la puissance ( $\pm 5 \%$ ). L'incertitude sur le volume mesuré est de ( $\pm 10 \%$ ). Les lignes en pointillés sont des guides pour les yeux.

Lorsque deux sous-impulsions sont utilisées et quel que soit le délai et la configuration utilisée, les courbes croissent linéairement avec l'augmentation de fluence. De plus, les courbes sont comprises entre les courbes de références réalisées en impulsion unique à **515 nm** et **1030 nm**. Néanmoins, une déviation est observable dans la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm) pour un délai de **-10 ps** et **+10 ps** puisque les courbes sont légèrement en dessous de la courbe de référence en impulsion unique à **1030 nm**. Le délai optimal, permettant de maximiser le volume ablaté, est de **0,5** à **1 ps** pour la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm) et de **1** à **4 ps** pour la configuration 470 fs (515 nm) – 10 ps (1030 nm).

### **Influence du ratio en fluence dans la configuration 470fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm)**

La Figure 58 représente le volume ablaté en fonction de la fluence totale pour différents ratios d'énergie entre les impulsions pour trois délais: **-1 ps** (Figure 58 (a)) ; **0 ps** (Figure 58 (b)) et **+1 ps** (Figure 58(c)) dans la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm). Les fluences des impulsions vertes et rouges sont respectivement reportées en légende et marquées par un gradient de couleur vert et rouge. Les courbes de références des volumes ablatés en impulsion unique sont également reportées sur les graphiques. Pour les trois délais, les volumes ablatés sont inférieurs en moyenne de **-25 %** aux volumes ablatés obtenus à fluence égale par une irradiation laser en impulsion unique à **515 nm**. Les courbes précédentes présentées dans la Figure 57 comportant un ratio en fluence fixe de **50:50** se situent au milieu des volumes ablatés pour un ratio en fluence de **0:100** ou **100:0**. Pour une même fluence totale, l'augmentation de fluence sur une des sous-impulsions provoque un déplacement des volumes ablatés vers les courbes de références. Il est à noter également sur la Figure 58 que quel que soit le ratio utilisé, le délai influe sur le degré de la pente des volumes ablatés avec l'augmentation de la fluence totale. Le volume ablaté augmente progressivement des délais négatifs jusqu'à son maximum pour un délai de **1 ps**, puis diminue lorsque le délai augmente davantage jusqu'à **+10 ps** (données non présentées ici par souci de concision).

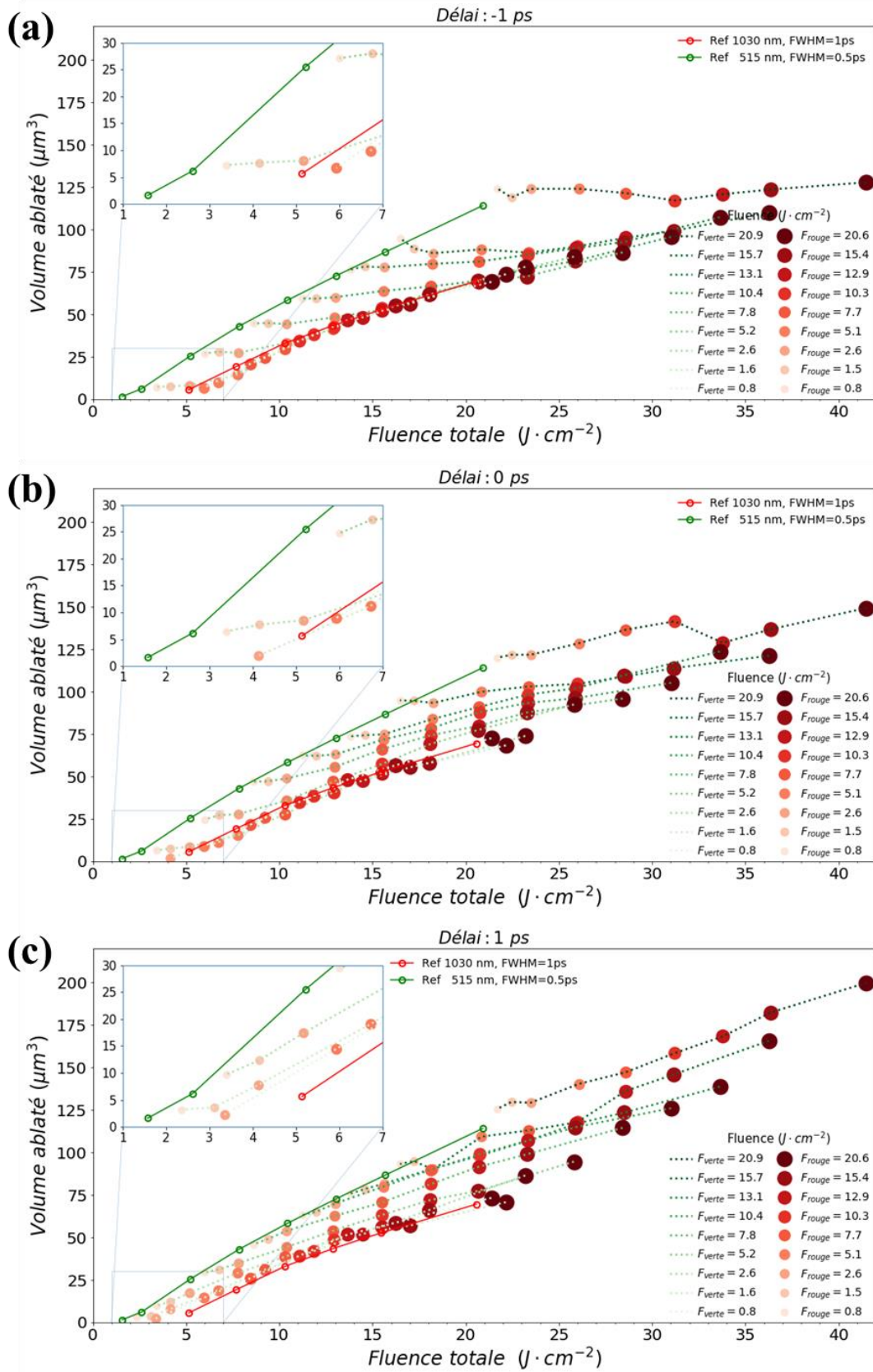


Figure 58. Volume ablaté en fonction de la fluence pour l'irradiation de la silice en surface avec une impulsion unique (trait plein) et pour deux sous-impulsions pour trois délais

d'impulsion à impulsion :  $-1$  ps en (a),  $0$  ps en (b) et  $+1$  ps en (c) dans la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm). L'incertitude de mesure de la fluence tient compte à la fois de la taille du faisceau ( $\pm 0,6 \mu\text{m}$ ) et des incertitudes sur la mesure de la puissance ( $\pm 5\%$ ). L'incertitude sur le volume mesuré est de ( $\pm 10\%$ ). Les points complets correspondent aux données mesurées. Les lignes en pointillés sont des guides pour les yeux.

### **Influence du ratio en fluence dans la configuration 470 fs (515 nm) – 10 ps (1030 nm)**

La Figure 59 représente le volume ablaté en fonction de la fluence totale pour différents ratios de fluence entre les sous-impulsions pour trois délais :  $-4$  ps (Figure 59(a)) ;  $0$  ps (Figure 59(b)) et  $+4$  ps (Figure 59(c)) dans la configuration 470 fs (515 nm) – 10 ps (1030 nm). Les courbes de références des volumes ablatés par l'irradiation en impulsion unique sont toujours reportées sur les graphiques. Quel que soit le délai étudié mais aussi le ratio en fluence entre les deux sous-impulsions, les volumes ablatés restent en dessous des volumes ablatés de référence réalisés en impulsion unique à  $515$  nm. Il est également à noter que les volumes ablatés obtenus avec un ratio de fluence de  $50:50$  entre les deux sous-impulsions sont contenus entre les volumes ablatés pour un ratio de  $0:100$  ou  $100:0$ . Dans cette configuration étudiée, le ratio de fluence entre les deux impulsions ne permet pas de trouver avec l'optimum du délai une configuration où les volumes ablatés sont supérieurs à ceux réalisés avec l'irradiation laser en impulsion unique à  $515$  nm.

En comparant les données des deux configurations, les volumes ablatés réalisés dans la configuration 470 fs (515 nm) – 10 ps (1030 nm) sont beaucoup moins importants que dans la première configuration 470fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm). De plus, il est possible d'observer quel que soit le ratio ou le délai utilisé, que ceux-ci influent très peu sur le degré des pentes des courbes d'ablation comparé à la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm).



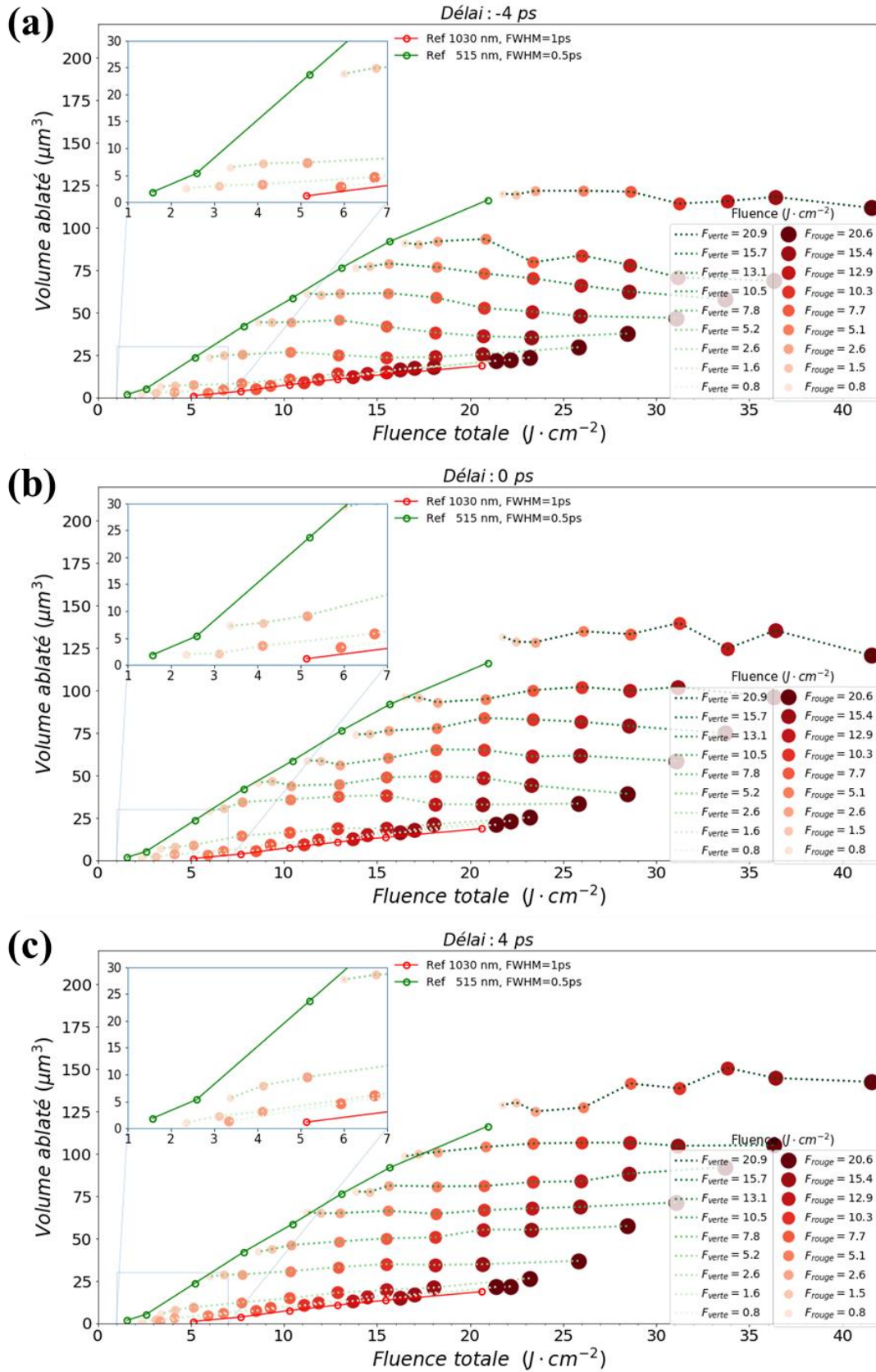


Figure 59. Volume ablaté en fonction de la fluence totale pour l'irradiation de la silice fondue en surface avec une impulsion unique (trait plein) et pour deux sous-impulsions pour trois

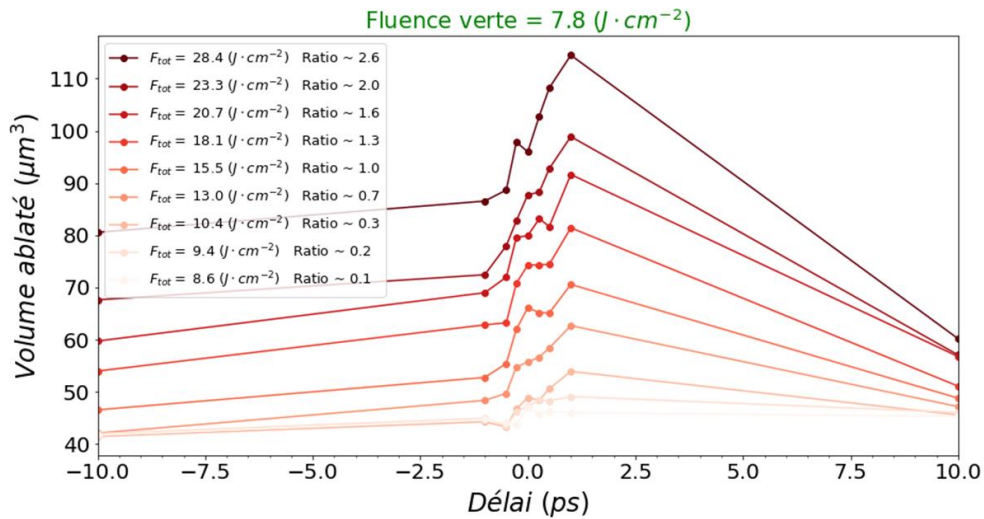


délais d'impulsion à impulsion :  $-4$  ps en (a),  $0$  ps en (b) et  $+4$  ps en (c) dans la configuration 470 fs (515 nm) – 10 ps (1030 nm). Les points complets correspondent aux données mesurées. L'incertitude de mesure de la fluence tient compte à la fois de la taille du faisceau ( $\pm 0,6$   $\mu\text{m}$ ) et des incertitudes sur la mesure de la puissance ( $\pm 5$  %). L'incertitude sur le volume mesuré est de ( $\pm 10$  %). Les lignes en pointillés sont des guides pour les yeux.

### Influence du délai

En Figure 60 est tracé le volume ablaté en fonction du délai pour une fluence de l'impulsion verte fixée à  $7,8 \text{ J/cm}^2$  et pour une fluence de l'impulsion rouge variant de  $0,1$  à  $2,6$  fois le niveau de fluence verte dans les configurations 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm) en Figure 60(a) et 470 fs (515 nm) – 10 ps (1030 nm) en Figure 60(b).

**(a)** 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm)  $Fluence_{515 \text{ nm}} = 7,8 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$



**(b)** 470 fs (515 nm) - 10 ps (1030 nm)  $Fluence_{515 \text{ nm}} = 7,8 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$

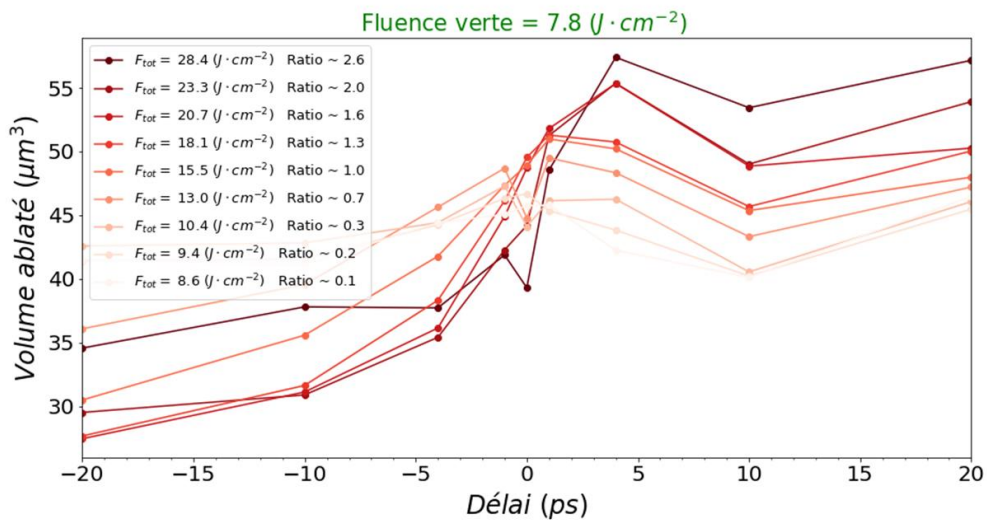


Figure 60. Volume ablaté en fonction du délai pour différentes fluences de l'impulsion rouge pour une fluence de l'impulsion verte fixée à  $7,8 \text{ J/cm}^2$  dans chacune des configurations 470

fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm) en (a) et 470 fs (515 nm) – 10 ps. (1030 nm) en (b). Les points complets correspondent aux données mesurées. Les lignes sont des guides pour les yeux.

La fluence fixe de  $7,8 \text{ J/cm}^2$  a été choisie pour l'impulsion verte, car les courbes sont représentatives de l'ensemble des différents paramètres utilisés pour des fluences correspondant à quelques fois le seuil en ablation. Dans les deux cas, une asymétrie sur les volumes ablatés est obtenue entre les délais positifs et négatifs quel que soit le ratio utilisé contrairement à ce qui a été obtenu dans le Chapitre 2 dans une configuration mono longueur d'onde avec une répartition en fluence de 50:50. Cette asymétrie démontre un effet coopératif entre les deux sous-impulsions pour des délais courts et positifs. Le délai optimum est de l'ordre de **1 ps**, quel que soit le ratio en fluence dans la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm), et de **4 ps** dans l'autre configuration. Dans la configuration 470 fs (515 nm) – 10 ps (1030 nm) les chutes des volumes ablatés constatés au long délai dans la configuration 470 fs (515 nm) – 10 ps (1030 nm) ne sont pas observés. En effet, pour un délai de **20 ps**, l'ablation remontre légèrement comparé au délai **10 ps** cependant l'augmentation n'est pas très significative au regard des incertitudes de mesure sur le volume ablaté qui est de l'ordre de **10 %**.

### 3.3. Profondeur et profil d'ablation

La Figure 61 montre le volume ablaté en fonction de la fluence totale avec une répartition en fluence de 50:50 pour les deux sous-impulsions avec différents délais dans la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm).

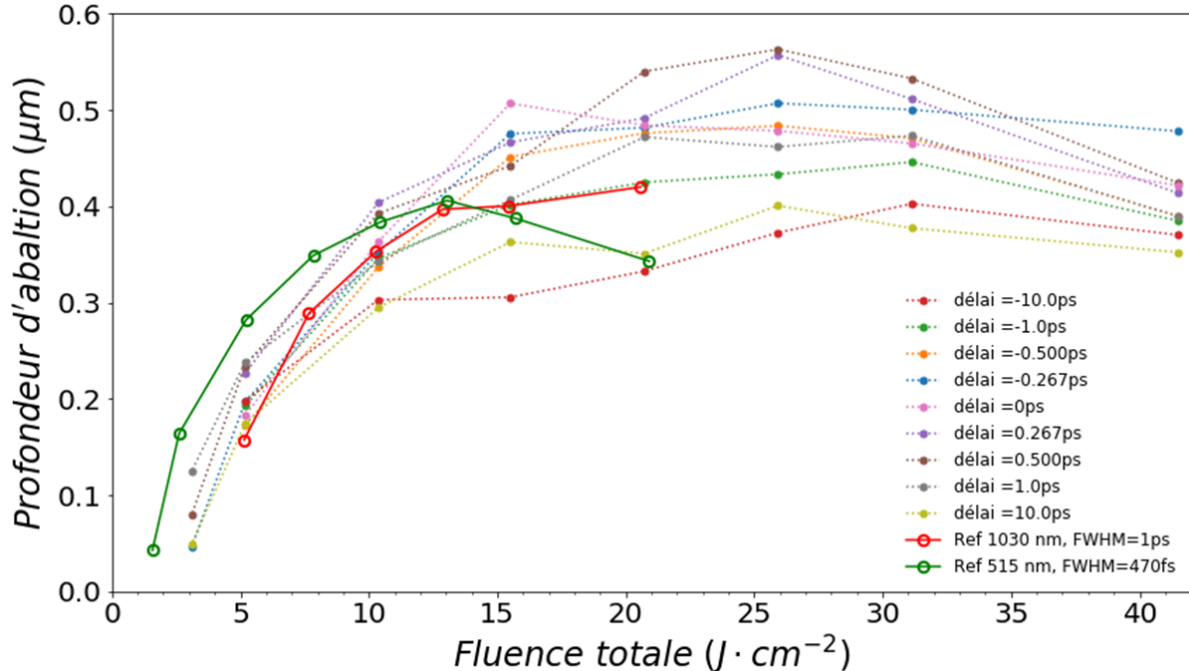


Figure 61. Profondeur d'ablation en fonction de la fluence totale dans la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm) avec une répartition en fluence de 50:50 pour les deux sous-impulsions pour différents délais. Les points complets correspondent aux données mesurées. Les lignes en pointillés sont des guides pour les yeux.

Les profondeurs d'ablation augmentent logarithmiquement avec la fluence jusqu'à  $10 \text{ J/cm}^2$  environ (coefficient de corrélation proche de 1, pour une régression suivant l'Eq. (51) du Chapitre 1 Section 3.2, suivant une absorption linéaire sur l'épaisseur de peau). Les régressions ne sont pas affichées afin de ne pas surcharger la figure. Entre  $12 \text{ J/cm}^2$  et  $16 \text{ J/cm}^2$  les profondeurs d'ablation pour les deux impulsions de référence sont relativement proches. Alors que pour des fluences inférieures à  $12 \text{ J/cm}^2$  l'impulsion verte ablate plus profondément pour une même fluence que l'impulsion rouge. Pour des fluences supérieures à  $16 \text{ J/cm}^2$ , l'inverse se produit, l'impulsion rouge ablate plus profondément que l'impulsion verte. Lorsque deux sous-impulsions sont utilisées pour des délais très élevés  $-10 \text{ ps}$  et  $10 \text{ ps}$ , les profondeurs d'ablation sont en dessous des courbes de références. Pour des délais plus courts compris entre  $-0,5$  et  $+0,5 \text{ ps}$  et pour des fluences supérieures à  $15 \text{ J/cm}^2$ , les profondeurs d'ablation sont légèrement au-dessus ( $\sim 0,1 \text{ }\mu\text{m}$ ) des courbes de références. Pour tous les délais et à plus basse fluence ( $< 7,5 \text{ J/cm}^2$ ), les profondeurs sont comprises entre les courbes de référence. À fluence totale égale, la profondeur est plus importante pour des délais entre  $0$  et  $+0,5 \text{ ps}$ . L'optimum de délai pour ablater le plus profondément dans la configuration  $50:50$  est un délai de  $+0,5 \text{ ps}$ .

La Figure 62 représente le volume ablaté en fonction de la fluence totale avec une répartition en fluence de  $50:50$  pour les deux impulsions avec différents délais dans la configuration  $470 \text{ fs}$  ( $515 \text{ nm}$ ) -  $10 \text{ ps}$  ( $1030 \text{ nm}$ ). Les profondeurs d'ablation augmentent logarithmiquement avec la fluence jusqu'à  $25 \text{ J/cm}^2$  environ sauf pour l'impulsion verte de référence (coefficient de corrélation proche de 1, pour une régression suivant l'Eq. (51) du Chapitre 1 Section 3.2).

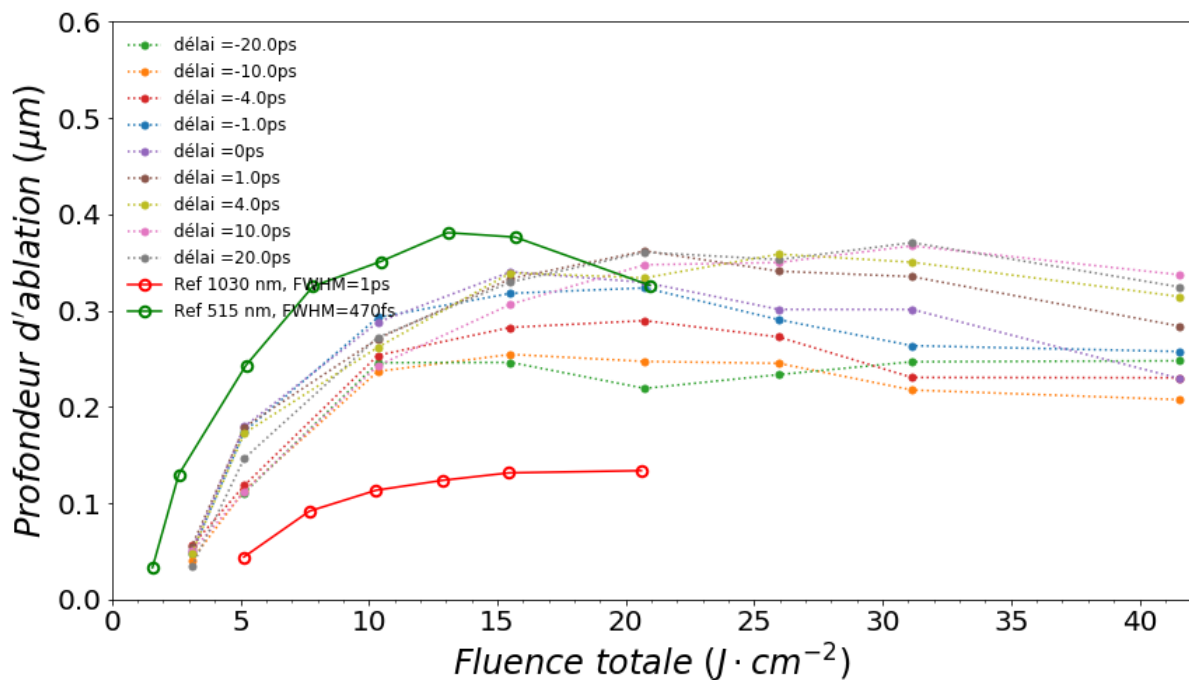


Figure 62. Profondeur d'ablation en fonction de la fluence totale dans la configuration  $470 \text{ fs}$  ( $515 \text{ nm}$ ) -  $10 \text{ ps}$  ( $1030 \text{ nm}$ ) avec une répartition en fluence de  $50:50$  pour les deux sous-impulsions pour différents délais. Les points complets correspondent aux données mesurées. Les lignes en pointillés sont des guides pour les yeux.

La profondeur d'ablation pour une impulsion de 515 nm est environ trois fois plus importante que pour l'impulsion à 1030 nm. Une diminution de la profondeur d'ablation est toujours présente après  $15 \text{ J/cm}^2$  pour l'impulsion de référence verte. Lorsque deux sous-impulsions sont utilisées et pour des fluences inférieures à  $15 \text{ J/cm}^2$ , les profondeurs d'ablation sont entre les courbes de référence. À plus forte fluence ( $>15 \text{ J/cm}^2$ ), la profondeur ne semble plus varier et reste au mieux (pour des délais de 4 ps, 10 ps et 20 ps) proche des profondeurs obtenues avec la courbe de référence verte à forte fluence.

Pour des ratios en fluence différents de 50:50, comme pour le volume ablaté, les courbes tendent respectivement vers les courbes de références, quel que soit le délai. Par exemple si le ratio en fluence est de 70:30 avec 70 % dans l'impulsion verte, alors les courbes se décalent vers la courbe de référence verte et inversement lorsque la proportion de fluence rouge augmente.

### Profil d'ablation pour les courbes de références

En Figure 63 est montré le profil d'ablation pour trois cratères à  $10,4 \text{ J/cm}^2$  pour les courbes de référence à 1030 nm pour 1 ps et 10 ps de durée d'impulsions puis à 515 nm à 470 fs. À fluence égale, le volume ablaté en impulsion unique de 515 nm à 470 fs est plus important qu'avec une impulsion de 1030 nm à 1 ps. Les cratères formés par l'impulsion à 515 nm de 470 fs présentent une profondeur d'ablation plus importante (Figure 61) d'environ 15 à 25 % pour des fluences inférieures à  $10 \text{ J/cm}^2$  comparé à une impulsion unique de 1030 nm à 1 ps.

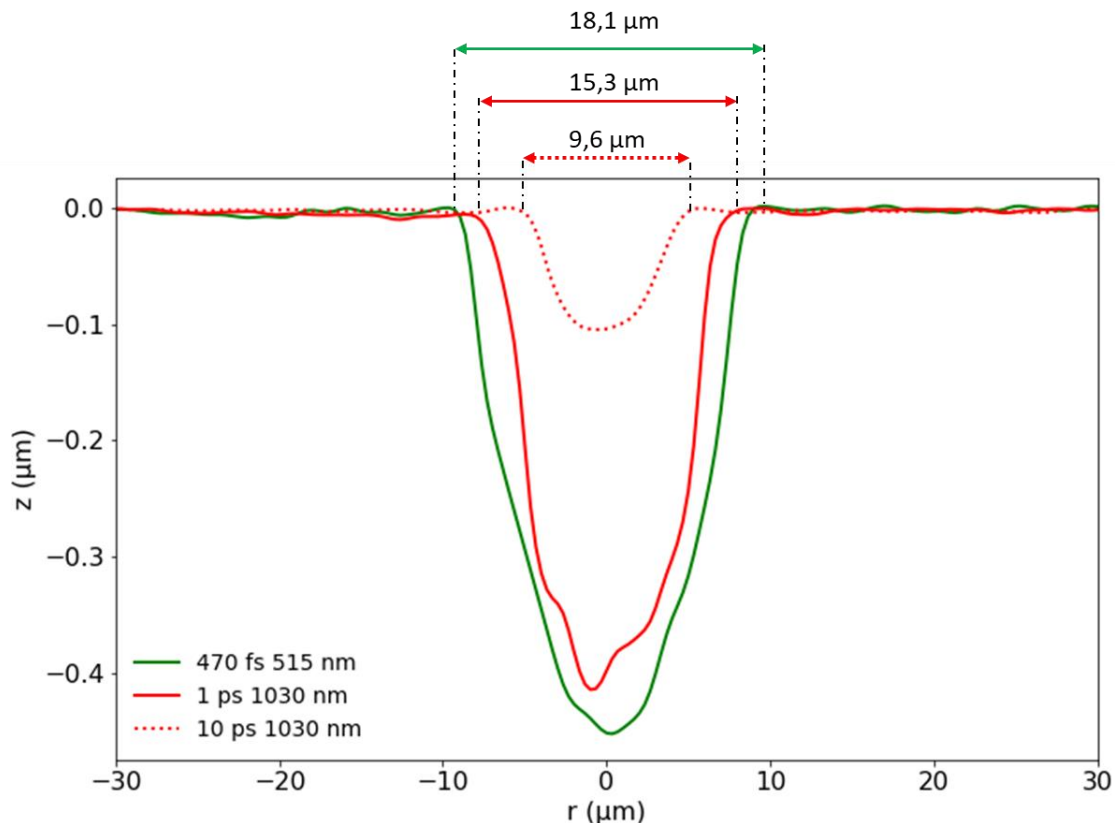


Figure 63. Profil d'ablation pour une impulsion unique à 1030 nm de 1 ps et 10 ps pour une fluence de  $10,3 \text{ J/cm}^2$  et pour une impulsion de 515 nm à 470 fs à une fluence de  $10,4 \text{ J/cm}^2$ .

Les profils d'ablation pour les deux configurations à double impulsion ne sont pas montrés par souci de concision, mais ils mènent à des profils et des diamètres d'ablation intermédiaires situés entre les courbes de références pour des fluences inférieures à  $10,4 \text{ J/cm}^2$ . Entre  $15 \text{ J/cm}^2$  et  $20 \text{ J/cm}^2$  et uniquement dans la configuration 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm), les profondeurs d'ablation sont supérieures à la courbes de référence 515 nm à 470 fs aux délais optimaux (Figure 61). Cependant, les diamètres d'ablation obtenus ne sont pas plus importants et même inférieurs à la courbe de référence de 515 nm à 470 fs.

#### 4. Discussion

Les résultats expérimentaux obtenus sont discutés dans cette section. Les différences en impulsion unique sont dans un premier temps analysées, puis dans un second temps l'utilisation de deux sous-impulsions dans la configuration 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm) et 470 fs (515 nm) - 10 ps (1030 nm).

Au début de l'interaction, la densité électronique augmente principalement par photoionisation puis par ionisation par impact, lorsque la densité électronique atteint  $1,05 \times 10^{21}$  et  $4,2 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$  respectivement pour les longueurs d'onde de 1030 nm et 515 nm, les propriétés optiques du plasma changent et la densité électronique n'augmente plus significativement. Le plasma devient de plus en plus réfléchissant au fur et à mesure que la densité électronique dépasse la densité électronique critique. La chute d'intensité associée à l'augmentation de la réflectivité ne permet plus de produire significativement des électrons libres. La photoionisation étant plus efficace pour un ordre photonique faible, à intensité égale, le seuil d'ablation pour les courtes longueurs d'onde est plus faible (Figure 56). La différence sur le seuil d'ablation en fluence entre les impulsions de référence à 1030 nm à 1 ps et 10 ps est principalement due à la chute de l'intensité avec l'augmentation de la durée d'impulsion. Une observation croisée entre les courbes de transmission (Figure 53) et les courbes d'ablation (Figure 56) montrent qu'il existe une zone d'incubation puisqu'une diminution de la transmission est observée sans ablation. Dans cette zone, une absorption non négligeable a lieu, mais elle n'est pas suffisante pour entraîner le changement de phase responsable de l'ablation.

En régime d'ablation et à fluence égale, les diamètres des cratères formés par l'impulsion verte de 515 nm à 470 fs sont plus importants que pour des impulsions rouges de 1030 nm à 1 ps ou 10 ps, les raisons sont les mêmes que celles précédemment évoquées avec le seuil d'ablation. En effet, ces différences sont dues à (i) un ordre multiphotonique deux fois plus faible pour une longueur d'onde de 515 nm comparé à une longueur d'onde de 1030 nm. (ii) la densité électronique peut être plus élevée dans le vert, donnant lieu à plus d'absorption. (iii) La diminution de l'intensité avec l'augmentation de la durée d'impulsion réduit la photoionisation à densité d'énergie égale. À fluence égale, l'intensité crête est plus importante d'un facteur 2 environ entre une impulsion de 515 nm à 470 fs et 1030 nm à 1 ps, puis d'un facteur 10 entre l'impulsion de 1030 nm à 1 ps et 10 ps réduisant ici le diamètre du cratère ablaté, mais aussi la profondeur d'ablation (Figure 62 et Figure 63). Il est intéressant de remarquer que les facteurs sur la différence de l'intensité crête entre les impulsions ne sont pas retrouvés ni sur la profondeur ni sur les diamètres d'ablation. Nous n'avons pas d'explication sur ce point.

Une observation croisée entre la transmission optique (Figure 54) et la profondeur d'ablation (Figure 61 et Figure 62) montre qu'il pourrait y avoir une modification de la propagation du faisceau vert lorsque la fluence dépasse  $10\text{-}12\text{ J/cm}^2$  environ. En effet, une légère augmentation de la transmission optique ( $\sim 10\%$ ) pour une impulsion verte est constatée avec une diminution de la profondeur d'ablation pour des fluences élevées. De plus, les données sur les volumes ablatés (Figure 56), sur les profondeurs d'ablation (Figure 61 et Figure 62) et les profils d'ablation (Figure 63) montrent que la perte de profondeur est compensée par une augmentation du diamètre ablaté, appuyant l'hypothèse d'une modification de propagation du faisceau vert. Une focalisation dans l'air due à l'effet Kerr, c'est à dire en amont de la surface de l'échantillon semble avoir lieu. Le calcul de la puissance critique pour une longueur d'onde de  $515\text{ nm}$  suivant l'Eq. (16) présentée dans la section 1.3.1 du Chapitre 1 est de  $8,6 \times 10^7\text{ W}$  (pour  $\lambda = 515\text{ nm}$  et  $n_2 = 4,5 \times 10^{-23}\text{ m}^2/\text{W}$  [36]). Cette puissance critique est atteinte pour des fluences supérieures à  $12\text{ J/cm}^2$  pour des impulsions de  $\lambda = 515\text{ nm}$  à  $470\text{ fs}$ . La modification de propagation du faisceau est donc associée à une auto focalisation du faisceau dans l'air, le faisceau laser initialement focalisé en surface du matériau et au fur et à mesure que la fluence augmente défocalisée en amont de la surface. Les conséquences sont une augmentation de la surface illuminée, lorsque le faisceau illumine la surface de l'échantillon, responsable : (i) d'une chute d'intensité, ce qui diminue la profondeur d'ablation et explique pourquoi une augmentation de transmission est constatée pour des fluences supérieures à  $12\text{ J/cm}^2$ . Cette puissance critique n'est pas atteinte à  $12\text{ J/cm}^2$  pour les impulsions à  $1030\text{ nm}$ .

On observe une différence des niveaux de saturation sur la transmission à haute fluence ( $< 15\text{ J/cm}^2$ ) pour une impulsion unique de  $1030\text{ nm}$  avec les expériences du Chapitre 2. En effet, une transmission de  $80\%$  est obtenue pour une impulsion de  $1\text{ ps}$  (Figure 53(a)) et de  $90\%$  à  $10\text{ ps}$  (Figure 53(b)), alors que la transmission était autour de  $20\text{-}30\%$  pour une impulsion de  $480\text{ fs}$  (Figure 36(a) dans le Chapitre 2). La différence peut être expliquée par la caractéristique de l'impulsion (durée, intensité), les conditions de focalisation et par de la diffusion. En effet, entre les expériences réalisées dans le Chapitre 2 et 3, la durée d'impulsion est différente, il y a un facteur  $2$  et  $20$  sur l'intensité respectivement pour une impulsion de durée  $1\text{ ps}$  et  $10\text{ ps}$ . Ainsi, à fluence égale, l'intensité est plus faible, il y a moins d'absorption et donc plus de transmission. Deuxièmement, l'ouverture numérique est de  $0,17$  et  $0,03$  respectivement pour les tests du Chapitre 2 et 3. La zone illuminée sur la photodiode (placée après le point focal) est plus importante au fur et à mesure que l'ouverture numérique augmente. À très forte fluence, un plasma dense et réfléchissant se forme (car une forte densité électronique est créée à forte fluence). La taille du plasma généré bien que dépendante des caractéristiques de l'impulsion sera d'autant plus petit que l'ouverture numérique est grande. Ce plasma peut être vu comme un objet sphérique dont la diffusion est décrite par la théorie de mie. Selon la théorie de mie, la diffusion peut être plus importante pour des objets sphériques de petite taille (comme un plasma réfléchissant de petite taille associée à une grande ouverture numérique). Ainsi, lorsque la diffusion se produit, une partie de ce rayonnement n'est pas captée par la photodiode et une transmission optique plus faible est mesurée avec l'augmentation de l'ouverture numérique. Pour des ouvertures numériques de  $0,4$  ;  $0,14$  ;  $0,08$  des expériences réalisées à ALPhANOV en interne montrent à forte fluence, pour la silice, une saturation de la transmission respectivement à  $20\%$  ;  $20\text{-}30\%$  et  $40\text{-}50\%$  pour une durée d'impulsion de  $\sim 500\text{ fs}$  à  $1030\text{ nm}$ , ce qui confirme notre observation.

#### 4.1. Double irradiation à 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm)

L'utilisation de deux longueurs d'onde permet théoriquement de contrôler plus efficacement la dynamique électronique, car une longueur d'onde plus courte permet d'accroître la photoionisation et une longueur d'onde plus grande améliore le chauffage électronique. L'ajout d'un délai approprié, c'est-à-dire pas trop court pour que les premiers électrons générés par photoionisation soient chauffés efficacement et pas trop long pour qu'ils n'aient pas totalement recombinaison devrait permettre de tirer bénéfice des avantages de chacune des impulsions.

Lorsqu'un délai est inséré entre les deux sous-impulsions, une asymétrie des courbes est obtenue selon le signe du délai. Les résultats diffèrent aussi bien sur les observables des taux de transmissions (Figure 53(a) et Figure 55) que sur les volumes ablatés (Figure 60). Lorsqu'une impulsion ionise le matériau, des électrons de conduction sont générés, ces électrons peuvent ensuite être chauffés et ioniser par impact d'autres électrons lorsqu'une seconde impulsion arrive avant qu'ils aient recombinaison. Le bénéfice lié au gain sur la photoionisation à 515 nm disparaît lorsque l'impulsion à 1030 nm arrive avant l'impulsion verte (délai négatif). Ainsi, il y a moins d'ionisation, les transmissions optiques sont plus hautes et le volume ablaté est moins important. Dans la Figure 55(c), la transmission optique dans le rouge augmente pour les délais positifs au fur et à mesure que la proportion de fluence rouge augmente, avec une fluence verte fixée. Cela peut être expliqué par la surface impactée par l'ionisation. En effet, dans les délais positifs, l'impulsion verte arrive en premier et ionise le matériau, la surface ionisée par l'impulsion verte sera d'autant plus importante que sa fluence est élevée. Ainsi, pour une fluence verte fixée et donc une surface ionisée fixe, lorsque la proportion de fluence rouge augmente, la surface illuminée en périphérie de l'ionisation de l'impulsion verte sera d'autant plus grande que la fluence rouge est élevée, augmentant ainsi la proportion de faisceau rouge transmis.

Ce paragraphe décrit les différences de transmission à 1030 nm, puis à 515 nm. Par observation croisée entre la transmission optique dans le rouge (Figure 53) et le volume ablaté (Figure 57(a) et Figure 58), lorsque le délai augmente de 0 à 1 ps, la baisse de transmission optique observée se manifeste par une meilleure absorption d'impulsion rouge puisque le volume ablaté pour une fluence donnée augmente. En revanche, pour des délais trop importants (+10 ps) la chute de transmission à 1030 nm est peut-être causée par un écrantage (matière qui commence à se vaporiser) du faisceau rouge ou une modification de sa propagation puisque le volume ablaté chute très fortement, entre 50 et 100 % pour des fluences totales comprises entre 20 et 40 J/cm<sup>2</sup>. En revanche, le délai n'influe pas sur les résultats de transmission à 515 nm, ce qui signifie que l'impulsion rouge n'influe pas quel que soit le délai sur la façon dont l'impulsion verte est absorbée. Cela explique par ailleurs pourquoi les courbes de transmission dans le vert sont au-dessus de la courbe de référence à basse fluence, puis en dessous à haute fluence. En effet, il s'agit d'une homothétie des courbes de transmission en F/2, car il est important de rappeler que les courbes en Figure 54(a) sont présentées pour un ratio en fluence de 50:50.

Le maximum de volume ablaté est obtenu pour un délai optimum de 1 ps (Figure 60). Cependant, une tendance de décalage du délai optimum est constatée de manière générale en fonction de la fluence des impulsions. La Figure 64 représente un échantillonnage des délais optimaux lorsque la fluence de l'impulsion rouge (trait rouge) est fixée en fonction de la fluence de l'autre impulsion. Le délai optimum est toujours positif, c'est-à-dire que le maximum d'ablation est atteint lorsque l'impulsion



rouge arrive après l'impulsion verte. Lorsque la fluence de l'impulsion excitatrice est fixée (impulsion verte), le délai optimum est de 267 fs à basse fluence ( $< 2,5 \text{ J/cm}^2$ ). Cet optimum augmente progressivement jusqu'à 1 ps jusqu'à la fluence de  $7,5 \text{ J/cm}^2$ . En effet, lorsque l'intensité de l'impulsion excitatrice (impulsion qui arrive en premier) est trop importante, la densité électronique critique est rapidement atteinte et elle n'augmente plus significativement avec l'augmentation de la fluence, car le plasma devient réfléchissant. Si le délai est trop important entre les deux sous-impulsions, ( $-10 \text{ ps}$  et  $+10 \text{ ps}$ ) alors les électrons ont suffisamment recombiné pour que l'effet de coopération entre les deux impulsions disparaisse. Lorsque la fluence de l'impulsion rouge, qui donne lieu à un chauffage efficace est fixée, la courbe d'optimum est légèrement différente que précédemment puisque le délai optimum de 1 ps est atteint lorsque l'impulsion excitatrice atteint  $5 \text{ J/cm}^2$ . La densité électronique critique étant légèrement plus élevée pour la longueur d'onde de  $515 \text{ nm}$  ( $4,2 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ ), le plasma y est donc plus réfléchissant pour les longueurs d'onde de  $1030 \text{ nm}$  ( $1,05 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ ) (Figure 53(a) et Figure 55(c)). Ainsi, un certain temps est nécessaire pour que le plasma se désopacifie grâce à la recombinaison électronique, permettant à l'impulsion rouge de pouvoir chauffer les électrons. Le délai optimum sera d'autant plus long que la densité électronique générée par l'impulsion excitatrice est élevée, soit des fluences plus élevées.

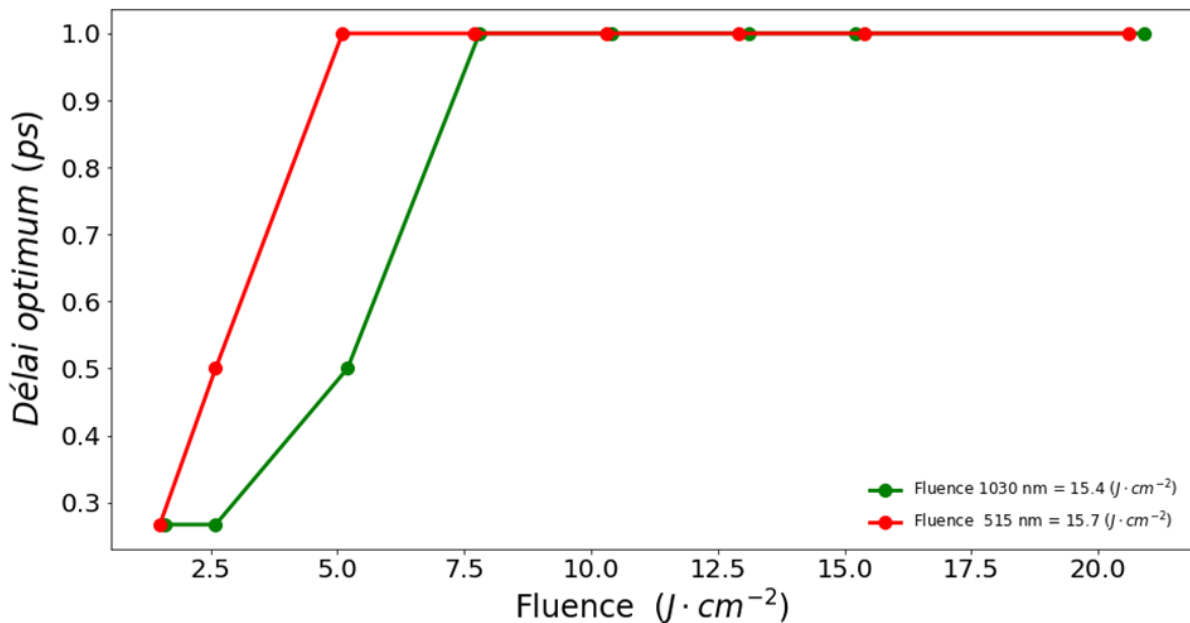


Figure 64. Délai optimum en fonction de la fluence pour une fluence fixée de  $15,4 \text{ J/cm}^2$  pour l'impulsion rouge ( $\text{FWHM} = 1 \text{ ps}$ ) et de  $15,7 \text{ J/cm}^2$  pour l'impulsion verte ( $\text{FWHM} = 470 \text{ fs}$ ). Lorsque la fluence d'une des sous-impulsion est fixée, c'est la fluence de l'autre couleur qui est variée.

Les explications précédentes sont étayées par la modélisation de la densité d'énergie déposée. Les calculs ont été effectués avec le modèle décrit à la Section 2 dans la configuration de deux sous-impulsions. Les paramètres de modélisation sont les mêmes que ceux déterminés dans la configuration à impulsion unique (voir Tableau 11). La Figure 65(a) montre la densité d'énergie absorbée (totale) en fonction du délai et de la fluence rouge. La fluence verte est fixée à  $3,0 \text{ J/cm}^2$ . Une fluence à  $3,0 \text{ J/cm}^2$  a été choisie pour l'impulsion verte pour deux raisons. Premièrement, parce qu'à des



fluences trop importantes le modèle n'est plus valide en raison des effets de propagation laser qui peuvent influencer les résultats. Deuxièmement, la fluence ne doit pas être trop faible et doit se situer dans un régime où l'ablation se produit pour être représentatif des résultats expérimentaux, car c'est le régime d'ablation qui est étudié. Afin de comparer les prédictions théoriques et les résultats expérimentaux présentés dans la Figure 60(a), des extractions de la densité d'énergie absorbée de la Figure 65(a) sont présentées en Figure 65(b) en fonction du délai pour différentes valeurs en fluence de l'impulsion rouge. La fluence totale est la somme de la fluence de l'impulsion verte et de l'impulsion rouge.

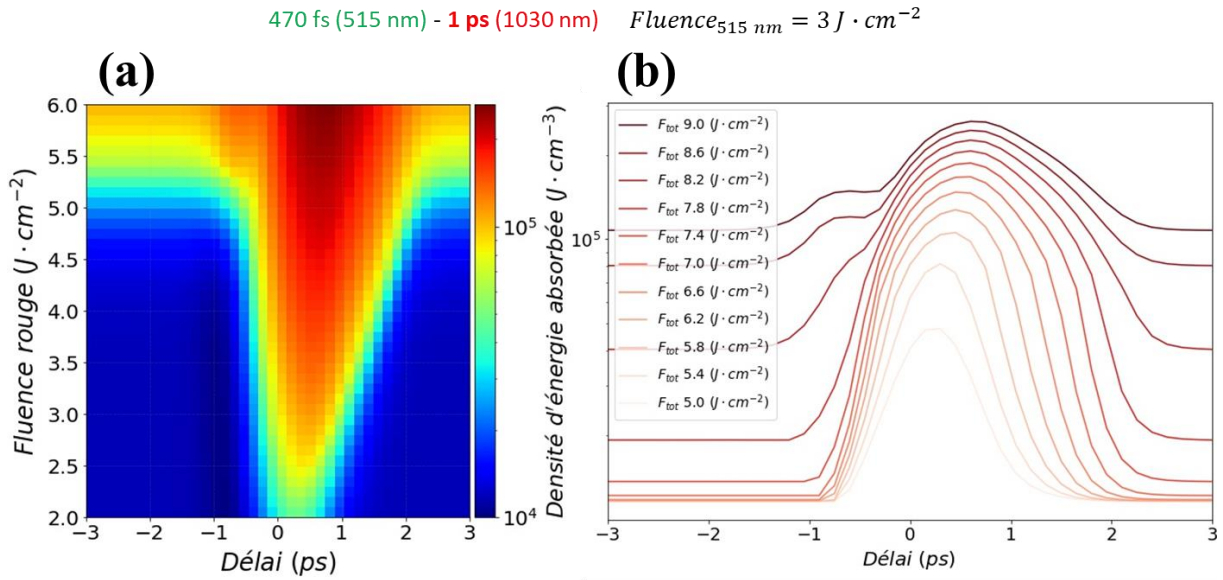


Figure 65. Calcul de la densité d'énergie absorbée en fonction du délai et de la fluence rouge en (a) et en fonction du délai pour diverses valeurs en fluence de l'impulsion rouge en (b). Les calculs sont réalisés avec le modèle présenté dans la Section 2. La fluence de l'impulsion verte est fixée à  $3,0\text{ J/cm}^2$  avec une durée d'impulsion FWHM de 470 fs et une fluence rouge variant de 2 à  $6\text{ J/cm}^2$ . Le délai est varié entre  $-3\text{ ps}$  jusqu'à  $+3\text{ ps}$ . Les délais négatifs correspondent au cas où l'impulsion rouge arrive avant l'impulsion verte.

Il y a trois zones remarquables :

- i. Pour les délais extrêmes ( $-3\text{ ps}$  et  $+3\text{ ps}$ ) les densités d'énergies sont très proches. Après  $3\text{ ps}$ , les électrons de conduction générés par la première impulsion ont en majorité recombiné, ainsi, lorsque survient une seconde irradiation, l'ionisation et le chauffage électronique est indépendante de la première irradiation (dans le modèle). Dans l'expérience des différences subsistent sur les volumes ablatés aux délais longs ( $-10\text{ ps}$  et  $+10\text{ ps}$ ) comme observé dans la Figure 60(a) et cela est généralisable à l'ensemble des résultats. Cette différence n'est pas reproduite par le modèle à cause de certaines hypothèses simplificatrices. En effet, ce modèle ne tient pas compte par exemple de l'influence de la température électronique sur les fréquences de collisions, des défauts dans le gap générés par la première impulsion, etc. En effet, il y a la formation de STE lors de première irradiation, lesquels peuvent favoriser une nouvelles excitation électronique (voir Section 1.2.3 du Chapitre 1 pour plus d'informations). Le temps de vie des STE est supérieur à  $10\text{ ps}$ , ainsi ils sont présents lors d'une seconde illumination après un délai de

**10 ps.** Les conditions de l'ionisation de ces STE vont dépendre à la fois de la longueur d'onde, de la durée d'impulsion et de l'intensité, pouvant expliquer les différences observées aux longs délais ( $-10$  ps et  $+10$  ps) entre le modèle et l'expérience. Par ailleurs, pour un délai de **10 ps**, qui correspond à peu près au temps de thermalisation entre les électrons et les phonons, la température de la matrice aura considérablement augmenté. L'augmentation de la température de la matrice affecte les propriétés du matériau, ce qui influe également sur l'ionisation lors d'une nouvelle irradiation laser.

- ii. Une asymétrie du dépôt d'énergie est obtenue, de plus il apparaît systématiquement un délai optimal positif permettant de maximiser le maximum d'énergie déposée (entre **0,267** et **1 ps**) conformément à l'expérience. L'asymétrie des courbes aux délais négatifs et positifs montre qu'il existe un effet de coopération entre les deux sous-impulsions comme le montre l'expérience (Figure 60(a)) ainsi que l'ensemble des résultats expérimentaux.
- iii. Un autre fait marquant est le décalage du délai optimum avec l'augmentation de la fluence rouge. Pour une fluence rouge de  $4 \text{ J/cm}^2$  il est de **470 fs**, alors qu'il est de **800 fs** pour une fluence rouge de  $6 \text{ J/cm}^2$ . Le décalage du délai avec l'augmentation de la fluence rouge s'explique par le fait que le chauffage électronique est plus significatif, car il est actif beaucoup plus prématurément au début de l'impulsion lorsque la fluence augmente. Ainsi, à faible fluence, comme la durée sur laquelle le chauffage électronique est plus courte, il est nécessaire de raccourcir le délai afin de chauffer efficacement les électrons avant qu'ils ne recombinent. À l'inverse, lorsque la fluence de l'impulsion rouge est plus forte, les électrons sont chauffés dès le début de l'impulsion, bien avant le pic d'intensité (de l'impulsion rouge) malgré un délai plus long.

Quel que soit le ratio entre les deux sous-impulsions, il n'existe pas de ratio en fluence optimal entre le faisceau rouge et le faisceau vert permettant d'optimiser le volume ablaté mis à part irradier le matériau avec le maximum de fluence disponible dans chaque impulsion. En effet, sur la Figure 66 est tracé le volume ablaté en fonction de la fluence du faisceau rouge et du faisceau vert pour un délai d'impulsion à impulsion de **1 ps** (il s'agit d'une autre représentation de la Figure 58(c)).

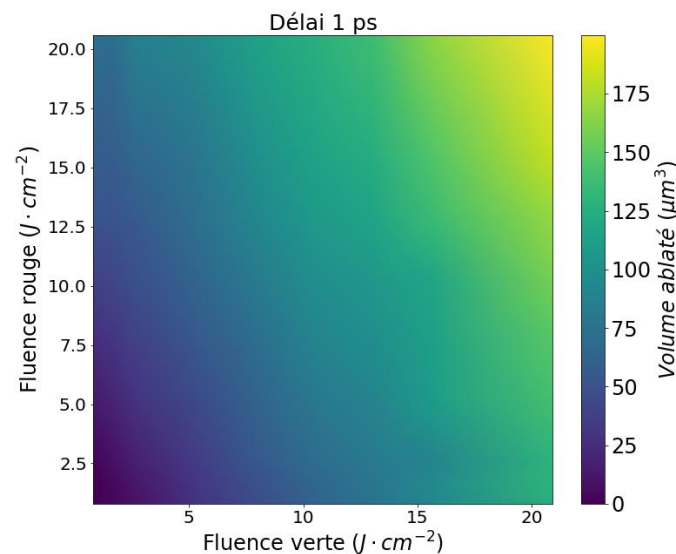


Figure 66. Volume ablaté en fonction de la fluence du faisceau rouge et du faisceau vert pour un délai de **1 ps** dans la configuration 470 fs (515 nm) - 1 ps (1030 nm).

Un ratio de 50:50 donne des volumes ablatés qui se situent en moyenne entre ce qu'ablaterait une impulsion unique de même fluence totale à 1030 nm et à 515 nm. Lorsque, la proportion de fluence n'est plus équitable et avec moins de fluence à 1030 nm, les volumes ablatés chutes. Ce phénomène est aussi observable en Figure 58.

Il est intéressant de comparer le volume ablaté par deux sous-impulsions à deux impulsions uniques de fluence équivalente. La Figure 67 représente la variation relative de ce volume ablaté en fonction du délai pour une fluence verte fixée à 7,8 J/cm<sup>2</sup> et différente valeur de fluence rouge. La variation relative du volume ablaté  $\Delta V_{abl}^{(1)}$  est calculée par la relation suivante :

$$\Delta V_{abl}^{(1)} = \frac{V_{abl}^{(515-1030\text{ nm})} - V_{abl}^{(515\text{ nm})} - V_{abl}^{(1030\text{ nm})}}{V_{abl}^{(515-1030\text{ nm})}} \times 100 \quad (58)$$

Où  $V_{abl}^{(515-1030\text{ nm})}$  est le volume ablaté par la contribution des deux sous-impulsions,  $V_{abl}^{(515\text{ nm})}$  est le volume ablaté par une impulsion unique de même fluence que la sous impulsion à 515 nm.  $V_{abl}^{(1030\text{ nm})}$  est le volume ablaté par une impulsion unique de même fluence que la sous impulsion à 1030 nm.

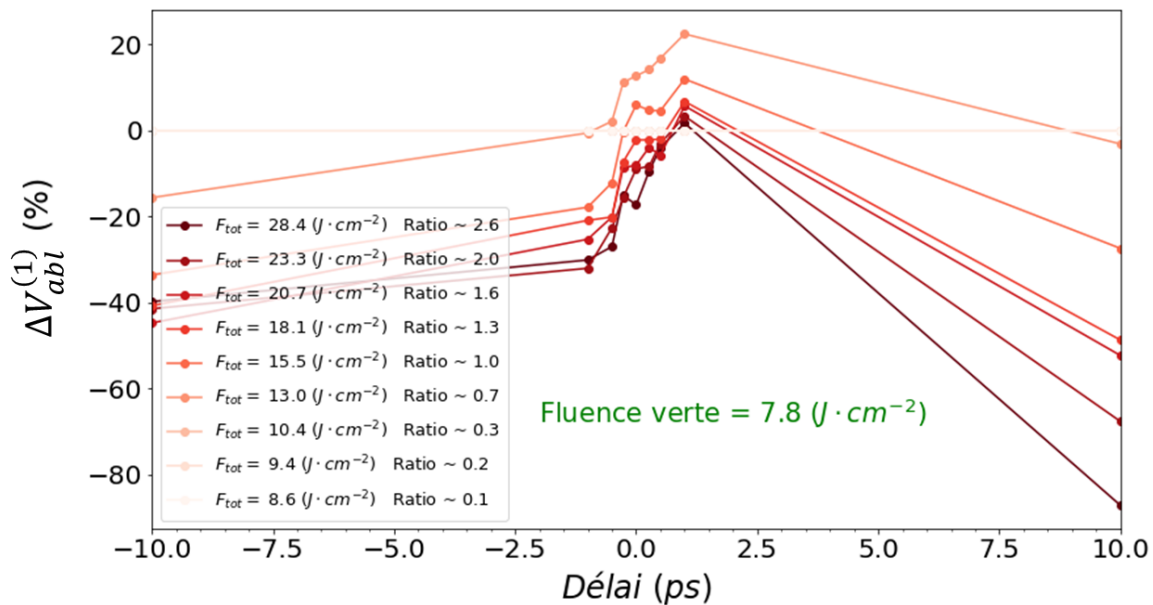


Figure 67. Variation relative du volume ablaté en fonction du délai pour différentes valeurs de fluence rouge et une fluence verte fixée à 7,8 J/cm<sup>2</sup>. La variation relative du volume ablaté  $\Delta V_{abl}^{(1)}$  est calculée suivant la relation de l'Eq. (58). Le pourcentage obtenu témoigne d'une synergie entre les deux impulsions lorsqu'il est positif, et à l'inverse d'un effet antagonisme lorsqu'il est négatif. L'incertitude sur les volumes ablatés mesurés est de 10 %. Les points complets correspondent aux données expérimentales. Les lignes sont des guides pour les yeux.

Le pourcentage obtenu rend compte de la coopération entre les deux sous-impulsions lorsqu'il est positif, et à l'inverse d'un effet antagonisme lorsqu'il est négatif. Dans l'utilisation de deux sous-impulsions, la variation relative du volume ablaté comparé à deux impulsions uniques est positive

pour des délais entre 0 et 1 ps et est maximale à 1 ps. Lorsque la sous-impulsion rouge contient 20 à 30 % de la fluence de la sous-impulsion verte, la variation relative du volume ablaté  $\Delta V_{abl}^{(1)}$  est maximale et est de l'ordre de 10 à 20 % comparé à l'utilisation de deux impulsions unique. Ici encore, les tendances observées sont représentatives de l'ensemble des données expérimentales acquises au cours de ces travaux. Il est important de noter que pour les délais longs  $-10$  ps et  $+10$  ps, la variation relative est différente et que dans les deux cas, celle-ci s'éloigne d'au moins 40 % des volumes ablatés comparés à ce qu'ablateraient des impulsions uniques. Il semblerait qu'il existe un conditionnement laser permettant de rendre le matériau moins absorbant pour de longs délais. L'explication précédemment proposée était le rôle joué par les STE, car leur formation et excitation à une nouvelle irradiation laser dépend de la longueur d'onde, de la durée d'impulsion et de l'intensité. Il s'agit certainement également d'un préconditionnement laser temporaire permettant d'annihiler des défauts précurseurs ou dus aux variations des propriétés physico-chimiques de la silice causée par l'échauffement de la maitrise, ne permettant pas de favoriser une nouvelle ionisation suite à l'ionisation par la premier impulsion rendant le matériau moins absorbant dans un laps de temps inférieur à l'éjection du matériau. Des études réalisées dans le KDP réalisées pour des impulsions nanosecondes montrent une tenue au flux accrue lorsque le matériau est initialement préconditionné par irradiation laser [166,167]. Des études réalisées en régime femtoseconde à 1030 nm à 800 nm en double impulsion montrent un conditionnement de la silice fondu dans l'étude du changement d'indice en intravolume [168].

Pour déterminer si le processus d'absorption en double impulsion permet dans le cadre de l'expérience de maximiser les volumes ablatés, il est nécessaire de comparer le volume ablaté par les deux sous-impulsions au volume ablaté par une impulsion unique de 470 fs et 515 nm. La Figure 68 représente la variation relative du volume ablaté en fonction du délai pour une fluence verte fixée à  $7,8 \text{ J/cm}^2$  par rapport à une impulsion unique à 515 nm et 470 fs pour différentes valeurs de fluence rouge.

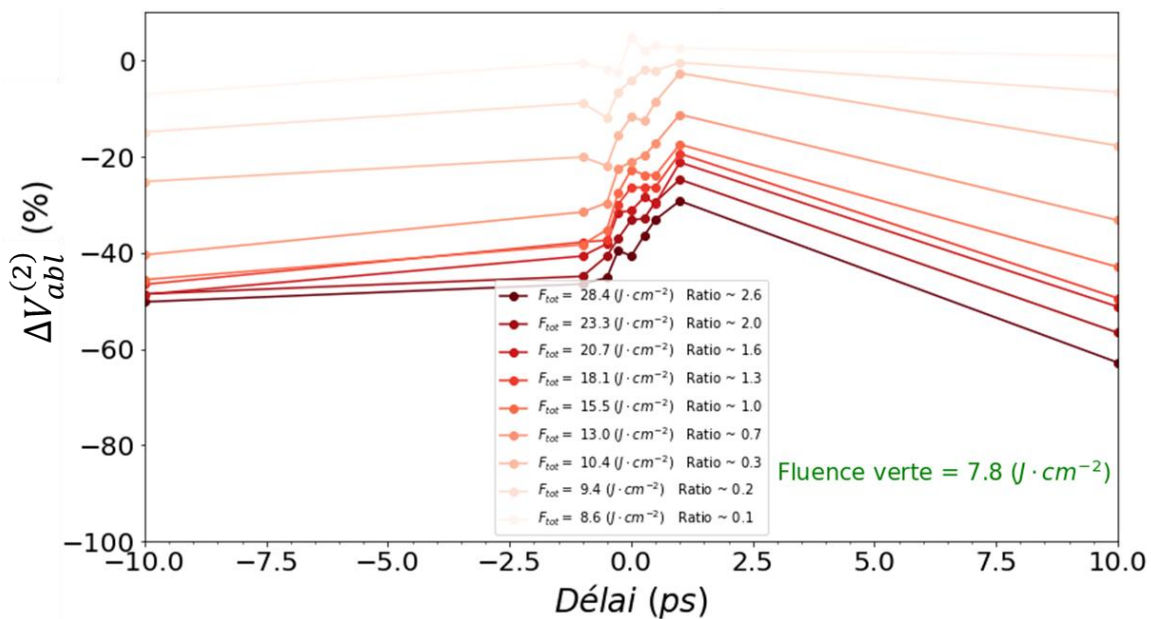


Figure 68. Variation relative du volume ablaté en fonction du délai pour différentes valeurs de fluence rouge et une fluence verte fixée à  $7,8 \text{ J/cm}^2$ . La variation relative du volume

ablaté  $\Delta V_{abl}^{(2)}$  est calculée suivant la relation de l'Eq. (59) en utilisant la régression de la Figure 56(a) d'expression  $10,56F^{0,82} - 15,29$  pour calculer le volume ablaté par une impulsion unique de 515 nm et 470 fs. L'incertitude sur les volumes ablatés mesurés est de 10 %. Les points complets correspondent aux données expérimentales. Les lignes sont des guides pour les yeux.

La variation du volume ablaté relative  $\Delta V_{abl}^{(2)}$  est maintenant calculée par la relation suivante :

$$\Delta V_{abl}^{(2)} = \frac{V_{abl}^{(515-1030 \text{ nm})} - V_{abl}^{(\text{fit } 515 \text{ nm})}}{V_{abl}^{(\text{fit } 515 \text{ nm})}} \times 100 \quad (59)$$

Où  $V_{abl}^{(515-1030 \text{ nm})}$  est le volume ablaté par la contribution des deux sous-impulsions,  $V_{abl}^{(\text{fit } 515 \text{ nm})}$  est le volume ablaté par une impulsion unique de même fluence totale.  $V_{abl}^{(\text{fit } 515 \text{ nm})}$  est calculé par l'expression  $10,56F^{0,82} - 15,29$  (régression de la courbe de référence déterminé dans la Figure 56(a), le coefficient de corrélation était de 0,99). Quel que soit le ratio utilisé et le délai, le volume ablaté reste toujours inférieur au volume ablaté par une impulsion unique de 470 fs à 515 nm. Cette observation est représentative de la tendance générale de l'ensemble des expériences réalisées, et ce quel que soit le délai ou le ratio en fluence (Figure 58).

Les résultats obtenus avec une double impulsion dans le but d'optimiser l'énergie laser déposée pour augmenter le volume ablaté pour une même énergie laser vont à l'encontre de l'effet espéré. Pour comprendre pourquoi l'utilisation de deux sous-impulsions n'améliore pas le dépôt d'énergie, des simulations ont été réalisées. Sur la Figure 69(a) sont tracées des prédictions théoriques de la densité d'énergie absorbée en fonction du délai pour différentes fluences rouges pour une fluence verte fixée à  $3,0 \text{ J/cm}^2$  (comme présenté dans la Figure 65(b)), à laquelle a été ajouté un dégradé de couleur verte la densité d'énergie à fluence totale égale d'une impulsion unique de 470 fs à 515 nm. Comme précédemment une fluence de  $3,0 \text{ J/cm}^2$  a été choisie pour rester dans le domaine de validité du modèle, la fluence ne doit pas être non plus trop faible pour que la comparaison à l'expérience ait du sens. Il faut se placer en régime d'ablation. En Figure 69(b) est tracée la variation relative de la densité d'énergie en fonction du délai pour différentes fluences rouges. La variation relative de la densité d'énergie  $\Delta E_{abs}$  est calculée par la relation suivante :

$$\Delta E_{abs} = \frac{E_{abs}^{(515-1030 \text{ nm})} - E_{abs}^{(515 \text{ nm})}}{E_{abs}^{(515 \text{ nm})}} \times 100 \quad (60)$$

Où  $E_{abs}^{(515-1030 \text{ nm})}$  est la densité d'énergie absorbée totale pour les doubles impulsions, et  $E_{abs}^{(515 \text{ nm})}$  est la densité d'énergie absorbée pour une impulsion unique de 470 fs à 515 nm de même fluence totale que l'impulsion double. Il est à noter que les simulations issues de la Figure 69(a)-(b) proviennent du modèle réglé de la Section 2. La Figure 69(c)-(d) sont des simulations réalisées en changeant le facteur d'échelle de la section efficace de chauffage en  $\lambda^2$  contrairement à la Figure 69(a)-(b) où celle-ci varie en  $\lambda^3$ . Sur la Figure 69(a)-(c), des différences sont observables. Le délai optimal dans les deux cas se situe autour de 250-800 fs et augmente au fur et à mesure que la proportion de fluence rouge augmente. Cependant, dans le cas où la section efficace de chauffage  $\sigma_{1030}$  varie en



$\lambda^2$  (Figure 69(c)), les courbes de densité d'énergie déposée sont davantage centrées autour de l'optimum. L'explication semble provenir de la durée de chauffage. En effet, lorsque la section efficace de chauffage  $\sigma_{1030}$  varie en  $\lambda^3$ , le chauffage électronique est plus efficace à basse intensité et il dure plus longtemps comparée à une section efficace de chauffage  $\sigma_{1030}$  variant en  $\lambda^2$ , expliquant pourquoi les courbes sont davantage centrées sur l'optimum de délai dans la Figure 69(c).

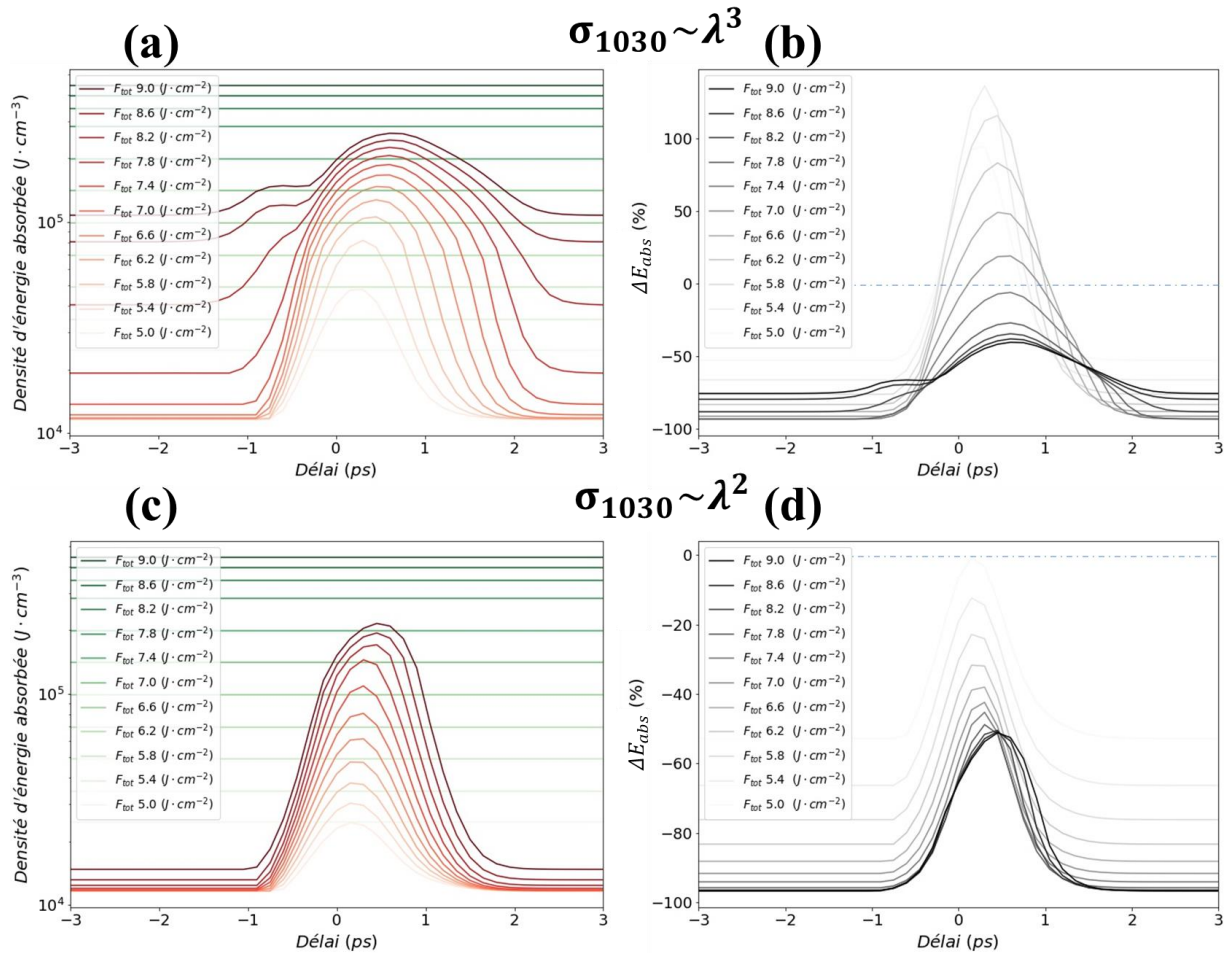


Figure 69. Densité d'énergie absorbée en fonction du délai pour une impulsion de 470 fs à 515 nm pour une fluence fixée à 3,0  $J/cm^2$  et une impulsion de 1 ps à 1030 nm pour une fluence variant entre 2 à 6  $J/cm^2$  respectivement pour une section efficace de chauffage variant en  $\lambda^3$  en (a) et en  $\lambda^2$  en (b). Le gradient vert affiché en (a) et en (c) représente la densité d'énergie déposée d'une impulsion unique de 515 nm à 470 fs pour une fluence de 5 à 9  $J/cm^2$ . Les figures (c) et (d) représente respectivement la variation d'énergie absorbée en fonction du délai respectivement pour les figures (a) et (c). La variation d'énergie absorbée est calculée suivant l'Eq. (60).

La densité d'énergie déposée par deux sous-impulsions est supérieure (0 à +120 %) comparée à ce que produirait une impulsion unique de même fluence de 470 fs à 515 nm lorsque la section efficace  $\sigma_{1030}$  varie en  $\lambda^3$  (Figure 69(b)) pour des fluences inférieures à 6,6  $J/cm^2$ . En revanche, pour des fluences supérieures à 6,6  $J/cm^2$  et au fur et à mesure que la fluence rouge augmente, l'énergie déposée par deux sous-impulsions devient quel que soit le délai, inférieure à ce que produit une impulsion

unique de 470 fs à 515 nm (0 à -50 %). Il est à noter qu'expérimentalement, aucune augmentation de volume ablaté n'a été constatée proche du seuil d'ablation dans l'utilisation de deux sous-impulsions comparées à une impulsion unique de 470 fs à 515 nm. Maintenant, lorsque la section efficace de chauffage  $\sigma_{1030}$  varie en  $\lambda^2$  (Figure 69(d)), quel que soit le ratio entre les deux sous-impulsions est le délai, la densité d'énergie déposée reste toujours en dessous (0 à -60 %) de ce que produirait une impulsion unique de 470 fs à 515 nm. Une loi d'échelle en  $\lambda^2$  est donc en meilleur accord à basse fluence avec les résultats expérimentaux obtenus. Bien que la loi d'échelle en  $\lambda^3$  permet au modèle de rendre compte au mieux des tendances expérimentales pour les seuils d'ablation ; il est en réalité tout à fait raisonnable de considérer une loi d'échelle comprise entre  $\lambda^2$ - $\lambda^3$  [48,57,58,60] pour la section efficace de chauffage. De plus, il est également probable qu'au fur et à mesure de l'ionisation, la section efficace de chauffage évolue au cours de l'ionisation. En effet, la section efficace de chauffage dépend de la fréquence de collision électronique qui évolue en fonction de la densité électronique et en fonction de la température électronique. Une expérience pompe-pompe-sonde avec analyse du spectre dans la gamme infrarouge à différents temps durant l'interaction permettrait de vérifier cette hypothèse.

D'autres simulations ont été réalisées (non présentées ici) en augmentant le temps de recombinaison électronique à 500 fs. Les résultats montrent un décalage du délai optimum vers 1,5-2 ps. Les densités d'énergie absorbées restent cependant comparables à ce qui est obtenu avec un temps de recombinaison de 150 fs.

#### 4.2. Double irradiation à 470 fs (515 nm) et 10 ps (1030 nm)

Lorsque la configuration 470 fs (515 nm) – 10 ps (1030 nm) est utilisée, une dissymétrie des courbes d'ablation est également obtenue autour du délai nul (Figure 57(b) et Figure 60(b)). La dissymétrie des courbes provient également des différents processus d'ionisation sollicités par chacune des impulsions (photoionisation et chauffage électroniques) de par leur propriété en termes de longueur d'onde, énergie et durée d'impulsion. Pour une impulsion de 10 ps, l'intensité crête est divisée d'un facteur dix comparé à l'utilisation d'une impulsion de 1 ps et la photoionisation est considérablement réduite puisque celle-ci varie non linéairement avec l'intensité laser (voir Chapitre 1).

Contrairement à la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm), il est difficile de déterminer un délai optimum permettant de maximiser le volume ablaté en utilisant ces deux impulsions puisqu'une fois le délai nul dépassé, les valeurs des volumes ablatés restent très similaires (Figure 59 et Figure 60(b)). Néanmoins, un délai de +4 ps semble favoriser en moyenne au regard de toutes les expériences une légère augmentation du volume ablaté (quelques pourcents). Ces résultats obtenus sont identiques avec d'autres paramètres. Le fait que le volume ablaté ne chute pas significativement au long délai supérieur à +10 ps semblent liés à la création de défauts. Les défauts créés par la première impulsion seront sensibles notamment à la durée d'impulsion de la seconde impulsion lors d'une prochaine ionisation, ce qui pourrait expliquer pourquoi ce comportement n'est pas observé dans la configuration précédente. Il est probable également qu'avec un délai plus important, la chute du volume ablaté observée dans la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm) soit également présente. De nouvelles expériences en utilisant un délai plus important permettraient de vérifier certaines hypothèses.

Ce paragraphe décrit les différences de transmission à **1030 nm**, puis à **515 nm**. Par observation croisée entre la transmission optique dans le rouge (Figure 53(b)) et le volume ablaté (Figure 53(b), Figure 58(b)) lorsque le délai est positif, la transmission optique dans le rouge baisse légèrement (**10 à 20 %**) alors que le volume ablaté augmente de **50 à 75 %** environ comparé aux délais négatifs inférieures à **-4 ps**. Ces observations montrent une meilleure absorption de l'impulsion rouge lorsqu'elle arrive après l'impulsion verte (délai positif). Il s'agit d'un chauffage accru au délai positif, car des électrons de conduction ont été générés sous l'irradiation de la première impulsion de **470 fs** à **515 nm**. Comme précédemment, le délai n'influe pas quel que soit le délai sur la façon dont les photons verts sont absorbés puisque les courbes sont semblables. L'homothétie des courbes en  $F/2$  est également présent en double impulsion, puisque le ratio en fluence présenté est de **50:50**.

Il n'existe également pas de ratio en fluence optimal entre les deux sous-impulsions permettant d'optimiser le volume ablaté (comme dans la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm) et quel que soit le délai utilisé (Figure 59). Pour un délai fixé à **+4 ps**, la Figure 70(a) représente le volume ablaté en fonction de la fluence de l'impulsion rouge et de l'impulsion verte. Il s'agit d'une autre représentation de la Figure 59(c). Les données montrent que l'ajout d'un faisceau rouge influe que très peu sur la quantité de volume ablaté. En revanche, la fluence utilisée avec le faisceau vert semble déterminante dans le processus d'ablation pour un délai fixé. Cette constatation est représentative de l'ensemble des paramètres variés, quel que soit le délai utilisé. Pour des délais négatifs importants, l'augmentation de la fluence rouge semblerait défavorable à une augmentation du volume ablaté. En effet, comme le montre la Figure 70(b), pour un délai de **-20 ps**, lorsque la fluence du faisceau rouge augmente pour une fluence verte fixée, le volume ablaté décroît légèrement. Cet effet s'estompe au fur et à mesure que le délai augmente jusqu'au délai nul. Lorsque l'impulsion rouge de **10 ps** ionise le matériau en premier, elle pourrait agir comme un préconditionnement (formation de STE, défauts). Il est à noter que cet effet aux délais longs négatifs n'est pas observé dans la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm). L'effet observé est donc probablement lié à la durée d'impulsion. Il se pourrait qu'une impulsion longue (nanoseconde) modifie davantage la structure de la bande permettant de préconditionner le matériau à une nouvelle ionisation laser en annihilant des défauts.

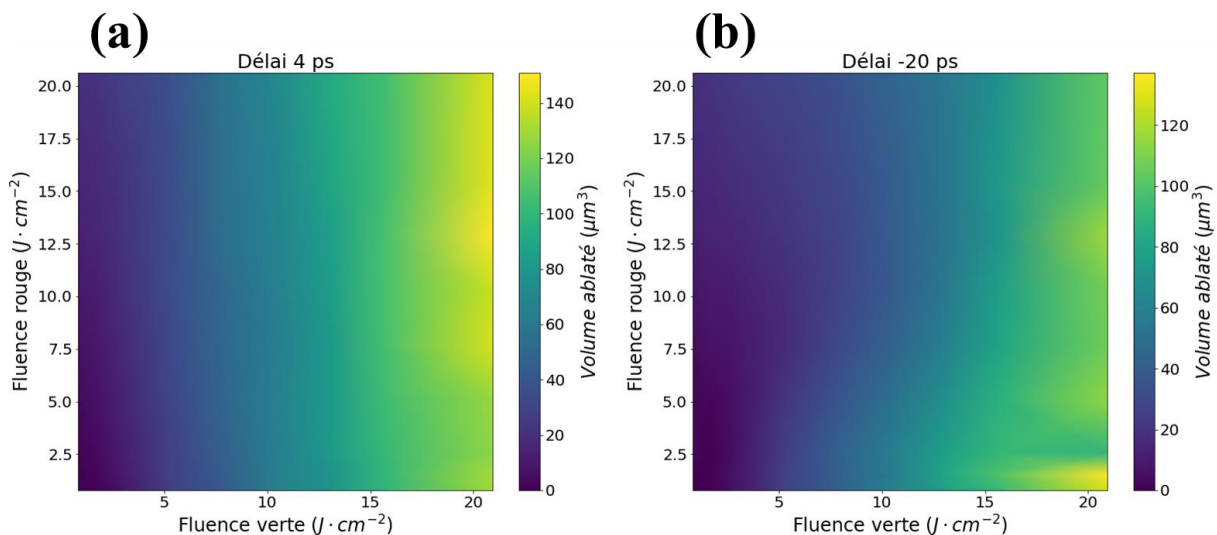


Figure 70. Volume ablaté en fonction de la fluence du faisceau rouge et du faisceau vert pour un délai de **+4 ps** en (a) et un délai de **-20 ps** en (b) dans la configuration 470 fs (515 nm) – 10 ps (1030 nm).



## 5. Synthèse

Dans le but d'optimiser le volume ablaté, une irradiation de la silice fondue par double impulsion de couleurs différentes a été étudiée dans la silice fondue en surface et en régime d'ablation. L'étude a été réalisée dans la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm) puis en configuration 470 fs (515 nm) – 10 ps (1030 nm). L'influence des paramètres du délai, de la durée d'impulsion à **1030 nm** et aussi le ratio de densité d'énergie entre les deux sous-impulsions ont été étudiés. Les résultats ont été discutés en termes de transmission optique à **515 nm** et **1030 nm**, de profondeur et de volume ablaté. Une faible portion des résultats obtenus a été montrée, mais les résultats présentés sont représentatifs des tendances générales observées avec l'ensemble des variations des paramètres.

Il est démontré que le délai a une influence majeure sur le volume ablaté. La tendance générale est un optimum du volume ablaté dans le processus d'irradiation à deux sous-impulsions pour un délai d'environ **1 ps** dans la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm). En revanche, ce délai optimum n'est pas clairement observable en configuration 470 fs (515 nm) – 10 ps (1030 nm), car il n'y a pas de variation significative supérieure aux incertitudes expérimentales. Néanmoins, la tendance semblerait se situer vers un optimum de délai entre **+4** et **+10 ps**. En revanche, en se plaçant au délai optimal pour chacune des deux configurations étudiées, il n'existe pas de répartition de densité d'énergie (ratio en fluence) optimale permettant de maximiser le volume ablaté. À fluence totale équivalente, la tendance générale est un volume ablaté intermédiaire entre celui observé pour une impulsion unique à **515 nm** (courbe haute) et une impulsion unique à **1030 nm** (courbe basse). Plus la proportion en fluence à **515 nm** augmente, plus le volume ablaté tend vers celui observé pour une impulsion unique à **515 nm** et inversement lorsque la fluence à **1030 nm** est augmentée.

Quelle que soit la configuration, le délai ou la répartition en fluence entre les deux sous-impulsions, le volume ablaté reste inférieur à celui mesuré avec une impulsion unique à **515 nm**. Le procédé utilisé avec deux sous-impulsions bi-chromatiques ne permet pas d'accroître ni le dépôt d'énergie ni le volume ablaté par rapport à une impulsion unique à **515 nm**. En revanche, il existe bien un effet coopératif entre les deux sous-impulsions séparées d'un délai **1 ps** (à l'optimum) en comparant ce que ferait une impulsion unique rouge et verte avec respectivement la même fluence contenue dans chacune des sous impulsions. L'effet de coopération est obtenu principalement lorsque la fluence rouge contenue dans la sous-impulsion contient **20 à 30 %** de la fluence de la sous-impulsion verte. Pour les longs délais, un conditionnement du matériau par l'irradiation de la première sous impulsion semble être observé, puisque le volume ablaté avec les deux sous-impulsions reste nettement inférieur (**40 %**) à ce qu'ablaterait deux impulsions uniques rouge et verte de fluence totale équivalente à chacune des sous-impulsions.

Des modélisations ont été réalisées afin de confirmer les explications dans la configuration 470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm) uniquement, car le modèle n'est pas applicable et vérifié pour des durées d'impulsions plus longues. Le modèle rend compte de la dynamique des électrons induits par le laser et permet de prédire le dépôt d'énergie laser. Ce modèle a été préalablement validé à partir des résultats obtenus avec une impulsion unique à **1030 nm** et **515 nm** ; en comparant l'évolution du volume ablaté mesuré expérimentalement à la densité d'énergie absorbée théorique requise pour chauffer le matériau (silice fondue) à la température d'ébullition. Les paramètres du modèle tel que la fréquence de collision électronique est exactement la même que celle fixé dans le modèle du Chapitre 2. Ces paramètres ont été conservés pour une irradiation à deux sous-impulsions. Le modèle retranscrit

les tendances observées expérimentalement. À savoir, la dyssymétrie des courbes et le délai d'impulsion à impulsion optimum. Il est à noter que le modèle ne prend pas en compte la photoionisation ou le chauffage combinant à la fois l'absorption en simultanée de photons à 515 nm et 1030 nm. Néanmoins, le modèle reste en bonne adéquation avec les résultats expérimentaux. Lorsque la densité d'énergie absorbée est comparée entre un procédé à deux sous-impulsions bi-chromatique et une impulsion unique de 470 fs à 515 nm, les simulations sont en bons accords avec les expériences. Toutefois, il semblerait que la section efficace de chauffage suit une loi d'échelle avec un exposant inférieur à trois sur la longueur d'onde ( $\lambda^3$ ), car un meilleur accord est obtenu pour les basses fluences avec un exposant deux ( $\lambda^2$ ). Il est aussi tout à fait possible que la section efficace de chauffage varie au cours de l'interaction.

Finalement, le procédé hybride en double impulsion ne permet pas d'accroître l'énergie laser déposée et l'ablation. En effet, l'impulsion verte conduit à une meilleure photoionisation du fait d'un ordre multiphotonique plus faible. D'autre part, l'impulsion verte utilisée ( $\sim 500$  fs) semble suffisamment longue pour chauffer efficacement les électrons de conduction malgré la loi d'échelle en longueur d'onde qui ne lui est pas favorable. Aussi, la réflectivité du plasma ne joue pas en faveur d'une absorption pour l'impulsion rouge. En effet, en régime d'ablation, la densité électronique critique est rapidement atteinte et celle-ci est plus importante pour l'impulsion verte que l'impulsion rouge. Lorsque la densité critique est dépassée pour la longueur d'onde à 1030 nm, la réflectivité devient significative pour l'impulsion rouge, il s'en suit une diminution de l'intensité laser disponible pour ioniser le matériau. Enfin, lorsqu'une impulsion rouge de 10 ps est utilisée, les électrons sont chauffés moins efficacement comparés à une impulsion de 1 ps. En effet, il semblerait que le taux de recombinaison soit plus important que celui de la production (photoionisation et impact), ainsi moins d'électrons sont chauffés et les volumes ablatés stagnent dans cette configuration.



# CHAPITRE 4. MISE EN FORME SPATIALE, ACCUMULATION THERMIQUE ET CONTRAINTES

---

## Sommaire

---

1. Dispositif expérimental et protocole.....	128
2. Analyse des échantillons en microscopie normale et en polarisation croisée .....	136
2.1. Fissuration et contraintes résiduelles .....	137
2.2. Endommagement inter-faisceaux sous-surfacique en segment .....	141
3. Modélisation de la formation des contraintes par une approche thermo-élastique .....	144
3.1. Description du modèle thermo-élastique .....	144
3.2. Résultats de simulation.....	147
3.2.1. Résultats thermiques.....	148
3.2.2. Résultats thermo-élastiques.....	151
4. Discussion.....	158
5. Synthèse .....	161

---

Dans ce chapitre, les résultats d'une irradiation sur de la silice fondue en différents endroits sont présentés pour différentes matrices de sous-faisceaux. Ce travail est réalisé dans la perspective de paralléliser les procédés lasers de perçage dits par percussion en séparant un faisceau principal en  $N$  sous-faisceaux. Cependant, l'irradiation simultanée peut conduire à des effets néfastes : l'accumulation de chaleur menant à des zones affectées thermiquement (zone fondue, ablatée), des contraintes résiduelles ou de la fissuration. Ce travail consiste donc à identifier les différents phénomènes néfastes à la parallélisation du procédé de perçage d'une part, et d'en identifier les paramètres d'influences et les limites d'autre part. Les diverses matrices de sous-faisceaux sont générées par l'intermédiaire d'un modulateur de phase spatial (SLM *en anglais pour Spatial Light Modulator*). Ce dispositif permet de répondre au besoin de paralléliser le procédé de perçage pour gagner en productivité.

Les études ont été menées avec un laser de 500 fs à 1030 nm en étudiant l'influence de différents paramètres laser comme : la fluence, le nombre d'impulsions, la taille des matrices de sous-faisceaux (en faisant varier la distance entre sous-faisceaux) et en étudiant l'influence de la fréquence de répétition laser. Les résultats ont été analysés en microscopie optique et en microscopie à polarisation croisée afin de révéler d'éventuelles contraintes résiduelles. Les matrices de sous-faisceaux réalisées

sont : deux sous-faisceaux, triangle, rectangle, matrice carrée, ... ). Les résultats obtenus avec une matrice de deux sous-faisceaux sont analysés en détails pour une raison académique, car ces résultats permettent de comprendre dans une configuration la plus simple possible les effets de coopération qui peut exister lors de l'irradiation simultanée.

Les résultats montrent une influence majeure de la distance entre sous-faisceaux, de la fréquence de répétition laser, de l'énergie déposée par les impulsions ainsi que du nombre d'impulsions et de l'énergie déposée par ces impulsions sur les contraintes résiduelles et les zones affectées thermiquement. Un modèle thermo-élastique a été développé dans le but de comprendre l'influence des différents paramètres laser sur la réponse thermo-élastique du matériau. En effet, le perçage laser induit dans le verre une charge thermique significative dont la relaxation peut conduire à l'apparition de contraintes mécaniques résiduelles, voire à la rupture du verre par fissuration, phénomène à éviter. Le modèle permet de calculer la carte thermique et les gradients de température dont sont déduites les contraintes de traction, compression et de cisaillement. Les contraintes calculées dans le modèle élastique sont comparées aux seuils de rupture théoriques, ce qui permet de potentiellement prédire des zones de rupture suite à l'accumulation de plusieurs impulsions. Le modèle numérique développé est résolu en deux dimensions de l'espace.

Le document est organisé comme suit. Le dispositif expérimental ainsi que le protocole d'analyse sont décrits dans la Section 1. Les résultats expérimentaux sont présentés dans la Section 2, elle-même composée de 2 sous-sections traitant des deux observables expérimentales. La Section 3 est consacrée à la présentation du modèle thermo-élastique ainsi que des simulations thermiques et thermo-élastiques effectuées sur quelques cas spécifiques. Pour finir, la Section 4 est consacrée à la discussion des résultats expérimentaux en les comparant aux résultats théoriques. Ce chapitre fait référence à 4 annexes. L'annexe D pour la technique de mesure du profil d'intensité spatiale. L'annexe F présente le modèle de diffusion thermique développé dans les deux dimensions de l'espace ainsi que sa validation par une solution analytique dans un cas simple. L'annexe G présente brièvement le principe d'un microscope à polarisation croisée. L'annexe H présente le schéma numérique du code thermo-élastique développé et sa validation par des solutions analytiques calculées dans des cas simples.

## **1. Dispositif expérimental et protocole**

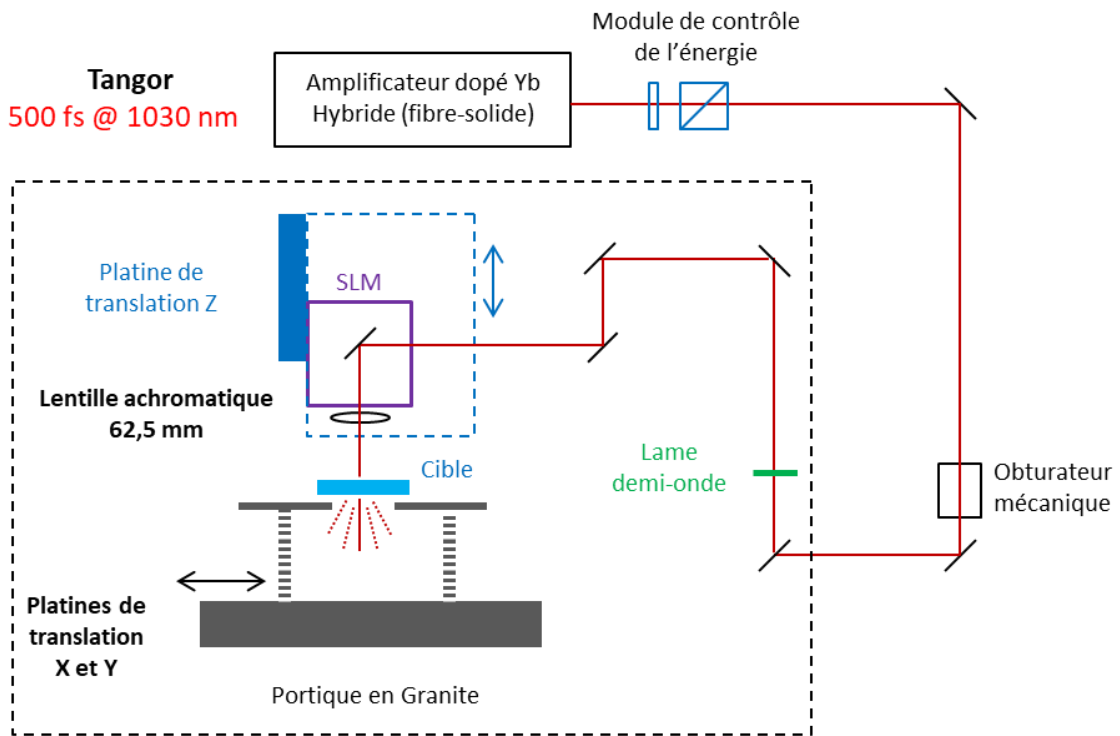
Le dispositif expérimental utilisé pour tous les tests comprend un laser femtoseconde, un SLM, une platine de translation 3 axes et une lentille de focalisation.

La Figure 71 représente le schéma du dispositif expérimental utilisé pour tous les tests. Le laser utilisé est un laser Tangor femtoseconde hybride dopé Yb amplifié. Le laser délivre des impulsions de longueur d'onde 1030 nm de forme gaussienne avec une largeur totale à mi-hauteur (FWHM) de 500 fs. Les principaux paramètres du laser utilisés sont résumés dans le Tableau 12. La fréquence de répétition varie de 200 kHz à 2 MHz. Néanmoins, un modulateur acousto-optique interne au laser permet de générer des fréquences de répétition plus faibles jusqu'à 50 kHz pour les essais. Une lame de phase demi-onde et un cube polarisant sont utilisés pour régler l'énergie des impulsions.

Tableau 12. Principaux paramètres laser

Longueur d'onde	Durée d'impulsion	Taux de répétition	Puissance moyenne maximale à 200 KHz sur cible
1030 nm	500 fs	50 kHz – 1 MHz	85 W

Un SLM a été utilisé pour les tests (modèle *VULQ1 – NIR de Qiova*) est suivi d'une lentille achromatique de distance focale **62,5 mm** en aval de celui-ci pour focaliser le faisceau en surface d'une lame de silice fondue de **75  $\mu\text{m}$**  d'épaisseur. La taille du faisceau focalisé est mesurée directement sur cible avec une caméra CMOS dont la taille des pixels est de **2,2  $\mu\text{m}$** . Pour mesurer la taille de faisceau, la technique présentée en Annexe D a été utilisée. Le diamètre de faisceau est de **17,5  $\pm$  1  $\mu\text{m}$**  à  $1/e^2$ . Une mesure de l'énergie est effectuée au niveau de l'échantillon grâce à un puissance mètre couplé à un contrôleur Maestro. L'incertitude sur la mesure de la puissance est d'environ 5 %. Le SLM est refroidi par eau, ce qui permet une meilleure stabilité du système d'une part et d'utiliser de la haute puissance moyenne d'autre part. La transmission optique entre la sortie laser et la sortie de la tête SLM est de 85 %. Une puissance de 85 W est donc disponible sur cible à 200 kHz.



Station de micro-usinage laser

Figure 71. Schéma du banc optique laser avec un laser Tangor, un SLM, une lentille de focalisation, l'échantillon, les platines translation XYZ et une lame demi-onde.

Le SLM fonctionne en réflexion. Il est constitué d'une matrice de cristaux liquides biréfringents qui s'orientent sous l'action d'un champ électrique. Le chemin optique parcouru par l'impulsion laser sera ainsi différent en fonction de l'orientation de ces cristaux du fait de la biréfringence. La différence

de chemin optique peut être modulée entre  $0$  et  $2\pi$  et discrétisée linéairement sur **256** niveaux. Le SLM comprend  $1280 \times 1080$  pixels contrôlables indépendamment les uns des autres. La taille d'un pixel est de  $12,5 \mu\text{m}$ , portant la surface de phase modulable à  $15,8 \times 12,8 \text{ mm}^2$ . Le temps de réponse pour actualiser le masque de phase est de **100 ms** environ. Il est nécessaire d'adapter la polarisation d'entrée pour que celle-ci coïncide avec l'orientation des cristaux qui composent le SLM. Pour ce faire, une lame demi-onde est utilisée en amont du SLM.

La communication et la génération des masques de phase ne sont pas réalisées via le logiciel fourni par le constructeur, mais via un programme exécutable édité en Python par Konstantin Mishchik de la société Amplitude Systèmes, sur la base d'un script en open-source [169]. Un programme écrit en Python permet d'interfacer et de contrôler une caméra *balsar*. Le code développé permet de régler les paramètres basiques de la caméra tels que le temps d'exposition et l'acquisition d'image. Ces programmes couplés à un algorithme permettent d'optimiser les masques de phases et d'homogénéiser l'intensité sur l'ensemble des faisceaux. L'algorithme utilisé pour générer les masques de phase se base sur l'algorithme de Gerchberg–Saxton [170–172]. L'avantage de cet algorithme est une vitesse de calcul élevée. La phase  $\phi(x', y')$  à appliquer sur le SLM de coordonnée  $(x', y')$  pour former un faisceau unique de coordonnées  $(x, y, z)$  sur cible est donnée par la relation suivante [170] :

$$\phi(x', y') = \frac{\pi z}{\lambda f^2} (x'^2 + y'^2) + \frac{2\pi}{\lambda f} (x'x + y'y) \quad (61)$$

Où  $f$  est la longueur focale du système de focalisation et  $\lambda$  est la longueur d'onde. Le terme  $\frac{\pi z}{\lambda f^2} (x'^2 + y'^2)$  correspond à la phase pour introduire une défocalisation. Lorsque la coordonnée  $z$  est non nulle, l'hologramme est décalé d'une distance  $z$  du plan de Fourier de la distance focale.

La génération d'un masque de phase  $\phi_{cgh}(x', y')$  comportant  $N$  faisceaux de coordonnées  $(x_n, y_n, z_n)$  sur cible est calculé en superposant l'ensemble des champs de phase requis pour chaque faisceau individuel par la relation suivante :

$$\phi_{cgh}(x', y') = \arg \sum_{n=1}^N \frac{1}{N} e^{-i(\phi_n(x', y') + \theta_n)} \quad (62)$$

Où  $\theta_n$  sont des termes de phase constants aléatoire entre  $0$  et  $2\pi$ .  $\phi_n$  est la phase individuelle de chaque faisceau calculé par l'Eq. (61). Cependant, l'uniformité des intensités des foyers créés n'est pas garantie pour deux raisons : (i) le calcul théorique est réalisé pour un front d'onde de phase aléatoire (le front d'onde du laser n'étant pas parfaitement connu). (ii) Le SLM possède un nombre fini de pixels de dimensions finies et une discrétisation finie des valeurs de phase, ce qui peut détériorer l'uniformité des intensités des différents foyers. En effet, la Figure 72(a) montre une image prise à la caméra CMOS pour un hologramme calculé avec l'Eq. (62) pour une matrice carrée  $5 \times 5$ . Il y a une grande disparité d'intensité entre les différents faisceaux créés. Pour améliorer l'uniformité des points d'intensité,  $N$  degrés de liberté sont introduits en remplaçant le terme  $\frac{1}{N}$  dans l'Eq. (62) par un coefficient de pondération (poids)  $\omega_n^k$  itérable afin d'optimiser l'hologramme :

$$\omega_n^k = \omega_n^{k-1} \frac{\langle I_n^k \rangle}{I_n^k} \quad (63)$$

où  $k$  est le nombre d'itérations,  $\omega_n^{k-1}$  est le poids de l'ancienne itération,  $\langle I_n^k \rangle$  est la valeur moyenne de l'intensité mesurée au centre des faisceaux et  $I_n^k$  est l'intensité au centre du faisceau à l'itération  $k$ . À chaque itération, l'intensité est mesurée et la pondération pour chaque faisceau est calculée avec l'Eq. (63), permettant de calculer un nouveau masque de phase par la relation :

$$\phi_{cgh}^k(x', y') = \arg \sum_{n=1}^N \omega_n^k e^{-i(\phi_n + \theta_n)} \quad (64)$$

Lorsque la phase ou les coefficients de pondérations ne varient plus significativement entre deux itérations, le masque de phase est optimisé. Il s'agit d'une amélioration de l'algorithme de Gerchberg–Saxton connu sous le nom de l'algorithme de Weighted Gerchberg–Saxton (WGS) [172]. Initialement (à  $k = 0$ ), la pondération est la même pour tous les faisceaux et  $\omega_n^0 = \frac{1}{N}$ . L'intensité de chaque faisceau est donnée théoriquement par la relation suivante :

$$I_n^k = \left| \int_{SLM} e^{-i(\phi_{cgh}^k - \phi_n)} dx' dy' \right| \quad (65)$$

Où  $\phi_{cgh}^k$  est calculé par l'Eq.(64),  $\phi_n$  est calculé par l'Eq.(61). Pour les masques de phases générés, le nombre d'itérations  $k$  se situe entre 10 et 20. La Figure 72(b) montre une image prise à la caméra CMOS pour un hologramme d'une matrice  $5 \times 5$  calculé avec l'Eq. (64) (algorithme de WGS) après 20 itérations. L'uniformité obtenue est de 97 %. L'uniformité est calculée par la relation suivante :

$$u = 1 - \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}} \quad (66)$$

Où  $I_{max}$  et  $I_{min}$  sont calculés en intégrant l'intensité autour de chaque faisceau, puis la valeur maximale et minimale est prise pour le calcul de l'uniformité.

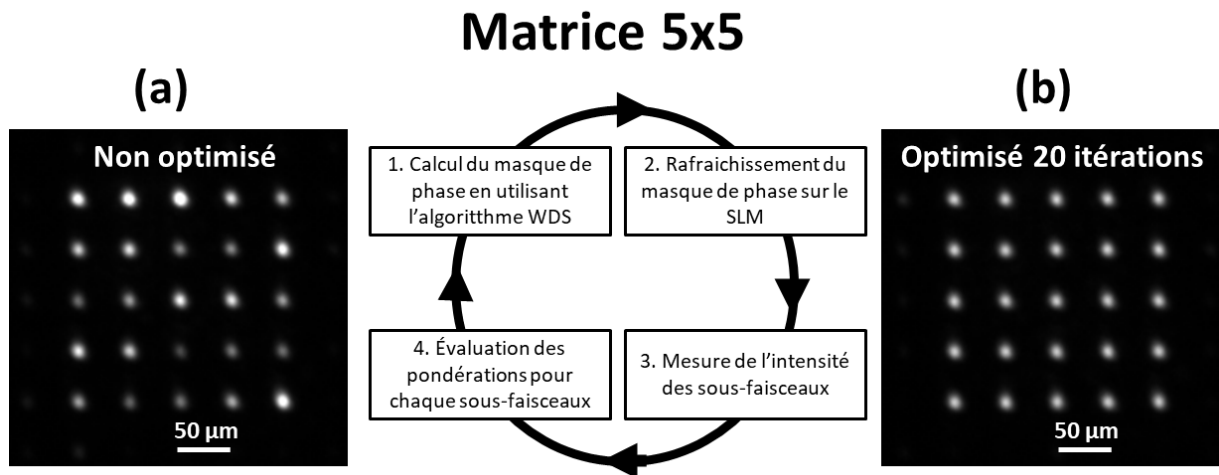


Figure 72. Image sur la caméra CCD dans le plan de focalisation d'une matrice  $5 \times 5$  réalisée au SLM en (a). En (b) l'image sur une caméra CCD d'une matrice  $5 \times 5$  réalisée au SLM



avec une optimisation de la carte de phase pour 20 itérations afin d'homogénéiser la différence d'énergie dans chacun des sous-faisceaux, l'uniformité calculé est de 97 %.

Dans les essais, différentes matrices de faisceaux sont réalisées grâce au SLM. Les matrices de faisceaux sont toutes optimisées avec l'algorithme de WGS. La Figure 73 représente différentes matrices de faisceaux et leur masque de phase associé appliqué au SLM, puis une observation à la caméra dans le plan de focalisation. Les matrices de faisceaux réalisées sont diverses : double faisceau, triple faisceau en triangle, matrice de points rectangle ou carrée ( $2 \times 8$  ;  $4 \times 4$  ;  $5 \times 5$  ;  $6 \times 6$  ;  $12 \times 12$ ).

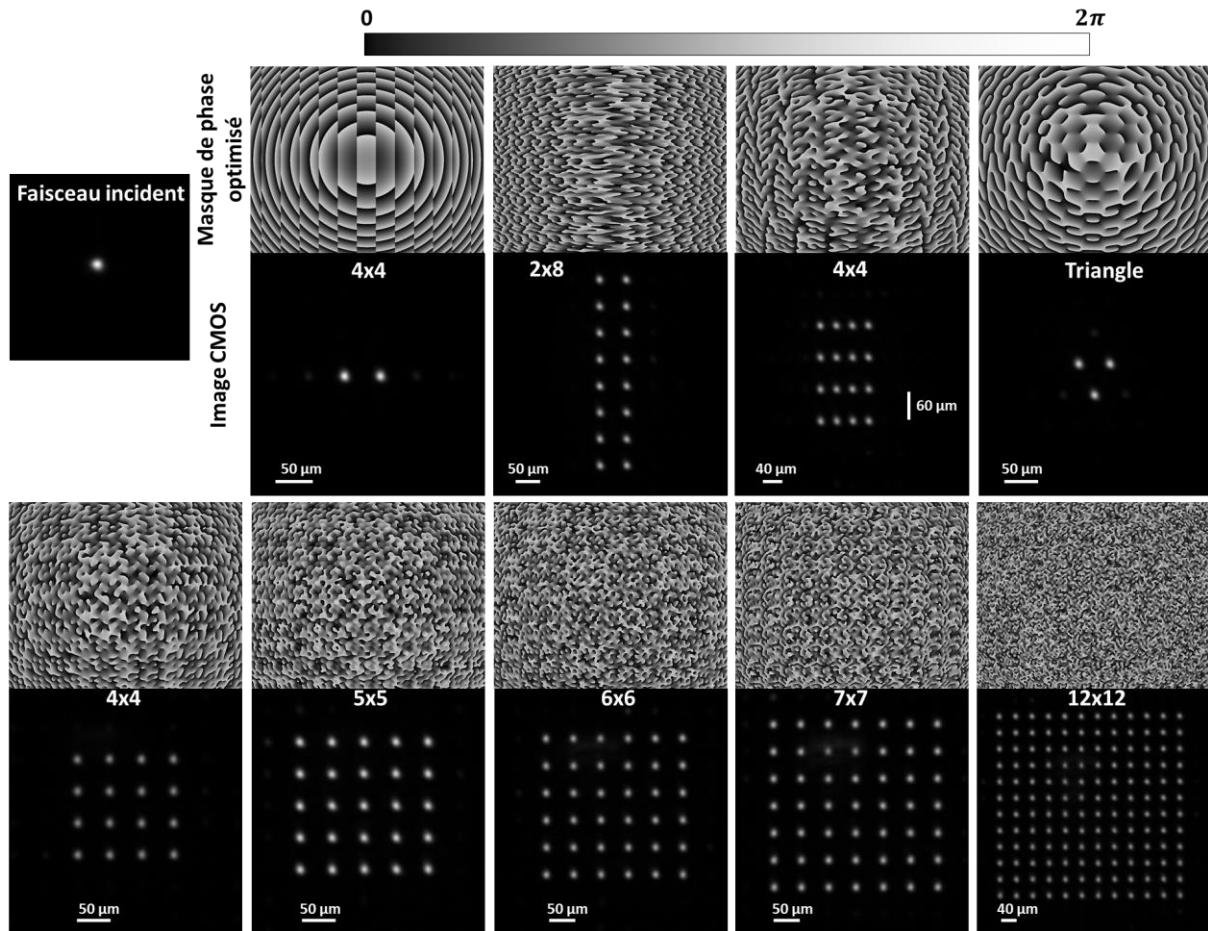


Figure 73. Image CMOS d'un faisceau incident sans masque de phase appliqué au SLM (en haut à gauche), puis différentes matrices de faisceaux sont réalisées lorsqu'un masque de phase est appliqué au SLM : ligne ; triangle ; rectangle ; carré. Le nombre de sous-faisceaux varie de 2 à 144. L'uniformité pour chaque matrice de faisceaux est supérieure à 95 %.

Il est à noter que pour toutes les matrices de faisceaux réalisées, une phase correspondant à un défocus a été appliquée aux masques de phases afin d'obtenir l'ordre zéro et le premier ordre (matrice de faisceaux d'intérêt) dans deux plans de focalisation distinct. En l'absence de cette technique, l'ordre zéro produit un point de sur-intensité indésirable sur la cible, venant ainsi polluer le profil d'intensité souhaité/induit par le masque de phase. Le défocus introduit entre l'ordre zéro et le premier ordre est

de  $900 \mu\text{m}$ . Il est à noter que l'énergie perdue dans l'ordre zéro et les ordres supérieurs à 1 sont de l'ordre de 10 à 15 %. Il est aussi important de noter que la fluence de l'impulsion incidente sera répartie dans les  $N$  faisceaux générés avec le SLM, moins les pertes de transmission optique du système. La fluence présentée dans les résultats expérimentaux correspond à la fluence de chaque sous-faisceau. Chaque sous-faisceau arrive en même temps sur le matériau. En moyenne, trois niveaux de fluence ont été explorés selon les matrices de faisceaux étudiées.

Pour chaque matrice de faisceaux étudiés, la distance inter-faisceau est également variée. La Figure 74 représente un exemple de ce qui a été réalisé avec deux sous-faisceaux.

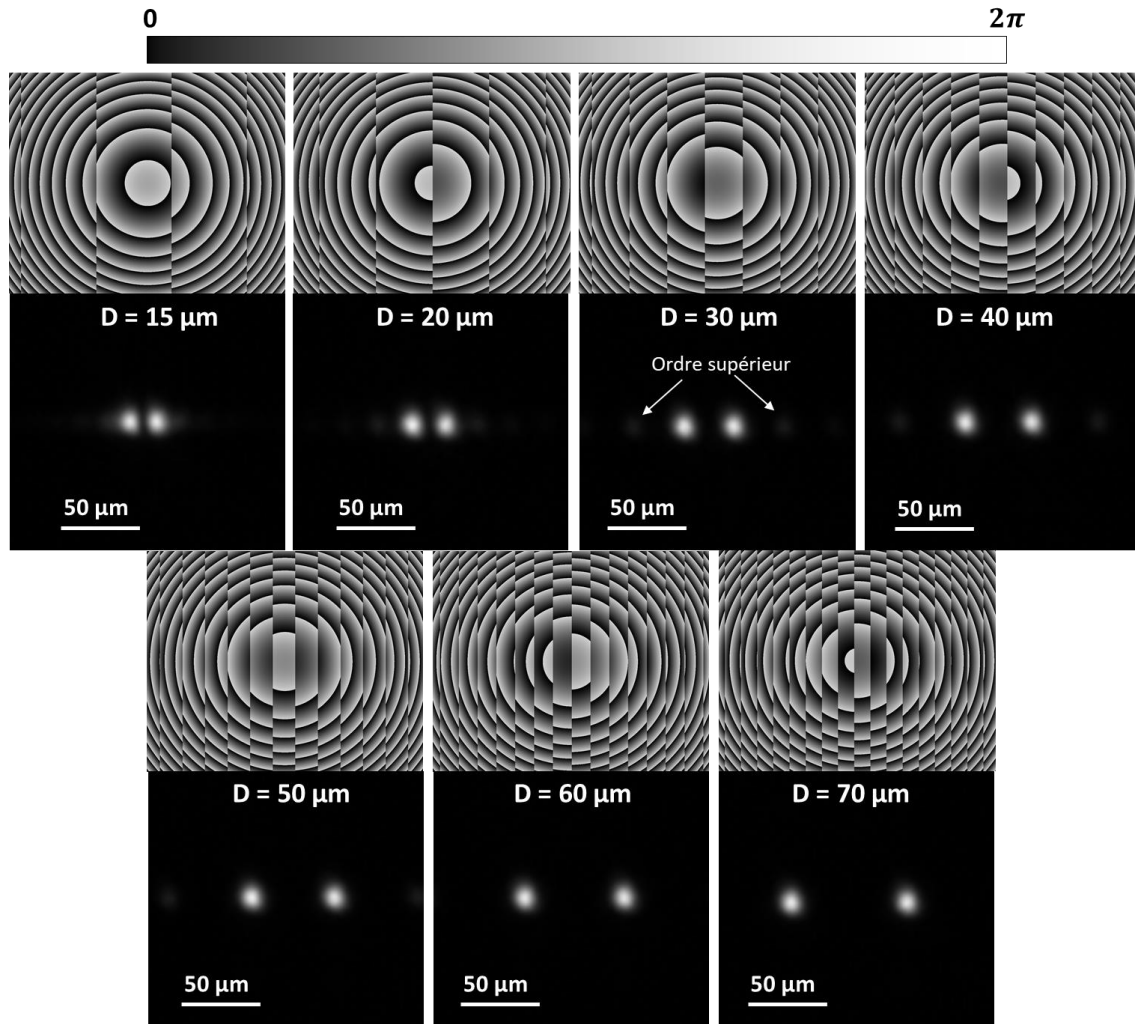


Figure 74. Masques de phase et images CMOS au plan focal pour différentes distances inter-faisceau (de centre à centre) de : 15 ; 20 ; 30 ; 40 ; 50 ; 60 et 70  $\mu\text{m}$  pour deux sous-faisceaux. Le diamètre des faisceaux est de  $17,5 \mu\text{m}$  à  $1/e^2$ .

Dans le cadre de l'étude avec deux sous-faisceaux, la distance inter-faisceau est variée de 15 à 70  $\mu\text{m}$  (en considérant une distance de centre à centre entre les deux sous-faisceaux). Pour toutes les autres structures, la distance est variée entre 30  $\mu\text{m}$  et 70  $\mu\text{m}$  par pas de 10  $\mu\text{m}$ . Sur la Figure 74, il est possible de voir les ordres supérieurs, notamment sur l'image correspondant à une distance inter-faisceau de 30  $\mu\text{m}$ . Sur les masques de phase, il est possible de deviner la phase d'une lentille de

Fresnel en plus de la phase nécessaire à la génération de deux faisceaux. Cette phase apparaît, car un défocus a volontairement été introduit afin de séparer l'ordre 0 des ordres supérieurs.

Dans chaque configuration la quantité d'impulsions envoyées est contrôlée. Le nombre d'impulsions envoyées sur cible varie de 10 à 10000 impulsions. Cependant, le signal du *gate* laser envoyé du contrôleur au laser ne permet pas de contrôler sur des temps inférieurs à 1 seconde le signal envoyé, et il n'est alors pas possible de définir précisément le nombre d'impulsions à envoyer sur la cible, un système électronique a donc été réalisé. Ce système électronique, basé sur une carte Arduino a été réalisé pour contrôler précisément le nombre d'impulsions. L'adjonction d'un filtre passe-bas composé de condensateurs et de résistances permet de supprimer le bruit dans le signal électrique (Figure 75). La carte Arduino Uno est un microcontrôleur programmable en langage C. Elle permet de générer des portes temporelles réglables dans le temps pour un potentiel de 5 V comme le montre la Figure 75. Ces portes sont envoyées via un câble BNC au modulateur acousto-optique (AOM *en anglais*) du laser. Connaissant le nombre d'impulsions à délivrer et la fréquence de répétition laser, il est ainsi possible d'en déduire la durée des portes à envoyer à l'AOM afin d'obtenir le nombre d'impulsions souhaité.

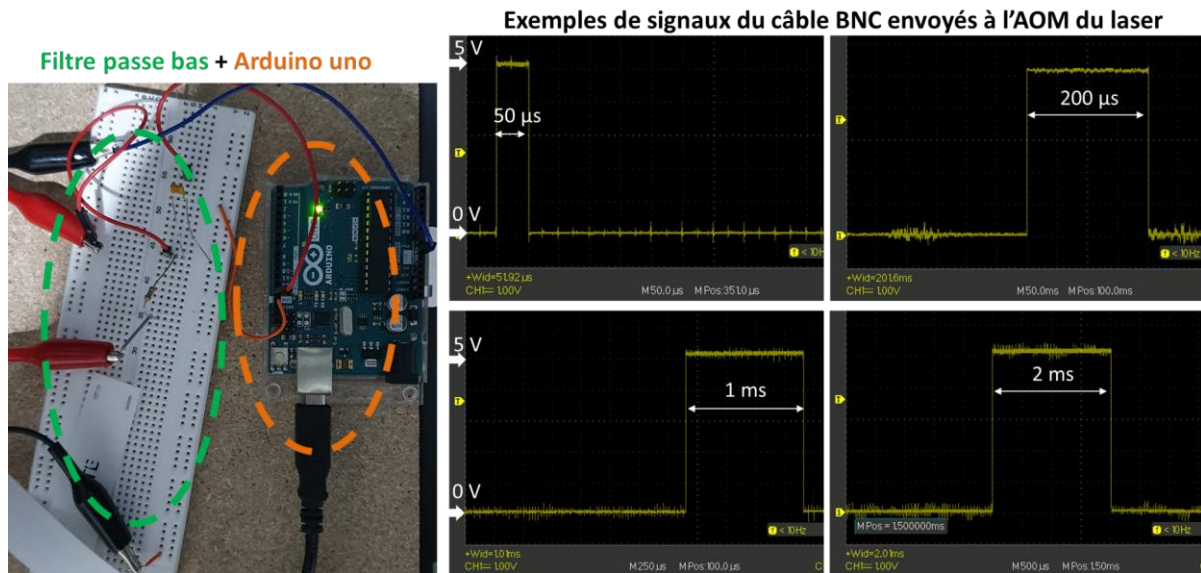
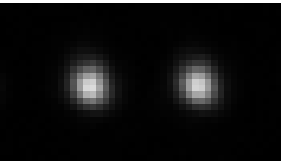
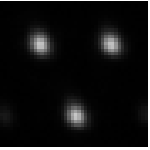
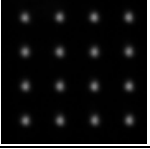
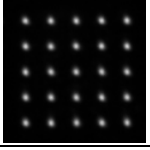
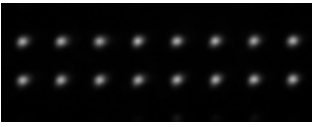
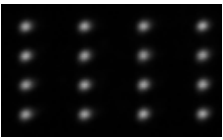


Figure 75. Photo du système électronique composé du filtre passe-bas et d'une carte Arduino Uno à gauche. À droite des images issues de l'oscilloscope du signal envoyé sur le câble BNC raccordé à l'AOM du laser.

Pour résumer, les paramètres étudiés sont : la fréquence de répétition laser, la fluence, la distance entre les sous-faisceaux (de centre à centre) et le nombre d'impulsions. Pour chaque matrice de sous-faisceaux réalisés au SLM, les fréquences de répétitions utilisées sont 50 kHz et 200 kHz. Pour chaque fréquence de répétition laser, 3 niveaux de fluences sont explorés. Pour chaque fluence étudiée, la distance inter-faisceaux est variée sur 5 distances pour chaque géométrie de matrice étudiée, afin d'identifier des régimes de coopération entre les faisceaux. Pour finir, pour chaque distance, le nombre d'impulsions varie sur 5 niveaux. L'ensemble des paramètres testés sont récapitulés dans le Tableau 13.

La variation du nombre d'impulsions, de la fluence associée et de la fréquence de répétition laser permettra d'identifier des régimes d'une forte charge thermique. L'étude de ces différents paramètres porte le nombre de tests laser à un peu plus de 1000. Un programme Python a donc été créé afin d'harmoniser la communication entre le SLM, la caméra CMOS, les platines de translation et le signal de *gate* envoyé au laser comme l'illustre la Figure 76. L'automatisation n'est pas complète, car la puissance est changée manuellement. Cependant, l'expérience ne peut pas être davantage automatisée, car il est nécessaire de changer régulièrement l'échantillon.

Tableau 13. Ensemble des paramètres variés lors des expériences. Il est mis en gras des combinaisons de paramètres présentées dans la section suivante.

Matrice de sous-faisceaux	Fréquence de répétition laser	Nombre d'impulsions	Fluence des sous-faisceaux	Distance inter faisceaux
$2 \times 1$ 	<b>50 kHz</b> <b>200 kHz</b>	10	$7,6 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$	15 $\mu\text{m}$
		<b>50</b>	<b><math>12,6 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}</math></b>	<b>20 <math>\mu\text{m}</math></b>
		<b>100</b>	$30 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$	<b>30 <math>\mu\text{m}</math></b>
		<b>1000</b>	<b><math>57,6 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}</math></b>	<b>40 <math>\mu\text{m}</math></b>
		10000		<b>50 <math>\mu\text{m}</math></b>
				<b>60 <math>\mu\text{m}</math></b>
		<b>70 <math>\mu\text{m}</math></b>		
$3 \times 1$ 	<b>50 kHz</b> <b>200 kHz</b>	10	$2,7 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$	<b>30 <math>\mu\text{m}</math></b>
		50	<b><math>6,1 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}</math></b>	<b>40 <math>\mu\text{m}</math></b>
		100	$9,4 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$	<b>50 <math>\mu\text{m}</math></b>
		<b>1000</b>	<b><math>35,4 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}</math></b>	<b>60 <math>\mu\text{m}</math></b>
		10000		<b>70 <math>\mu\text{m}</math></b>
$4 \times 4$ 	<b>50 kHz</b> <b>200 kHz</b>	10	$2,7 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$	30 $\mu\text{m}$
		50	$6,1 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$	<b>40 <math>\mu\text{m}</math></b>
		<b>100</b>	<b><math>9,2 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}</math></b>	<b>50 <math>\mu\text{m}</math></b>
		1000		60 $\mu\text{m}$
		10000		70 $\mu\text{m}$
$5 \times 5$ 	<b>50 kHz</b> <b>200 kHz</b>	10	$2,7 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$	30 $\mu\text{m}$
		50	<b><math>6 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}</math></b>	<b>40 <math>\mu\text{m}</math></b>
		100		<b>50 <math>\mu\text{m}</math></b>
		<b>1000</b>		<b>60 <math>\mu\text{m}</math></b>
		10000		70 $\mu\text{m}$
$8 \times 2$ 	<b>50 kHz</b> <b>200 kHz</b>	10	$2,7 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$	30 $\mu\text{m}$
		50	$6,1 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$	40 $\mu\text{m}$
		100	$9,4 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$	50 $\mu\text{m}$
		1000		60 $\mu\text{m}$
		10000		70 $\mu\text{m}$
$4 \times 4$ 	<b>50 kHz</b> <b>200 kHz</b>	10	$2,7 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$	30 – 60 $\mu\text{m}$
		50	$6,1 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$	40 – 70 $\mu\text{m}$
		100	$9,2 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$	50 – 80 $\mu\text{m}$
		1000		
		10000		

Les échantillons issus des essais laser sont ensuite observés au microscope optique. L'écaillage, les zones surfondues et les fissures ont été analysés. De plus, pour compléter les observations au microscope conventionnel, un microscope à polarisation croisée a été construit. Le microscope à polarisation croisée permet d'observer les zones de biréfringences créées suite à l'irradiation laser. Le microscope à polarisation croisée permet en outre d'identifier les zones de contraintes résiduelles, étant donné que celles-ci introduisent des zones de suppression associées à une variation de la densité permettant d'obtenir une biréfringence. L'annexe G détaille le fonctionnement d'un microscope à polarisation croisée.

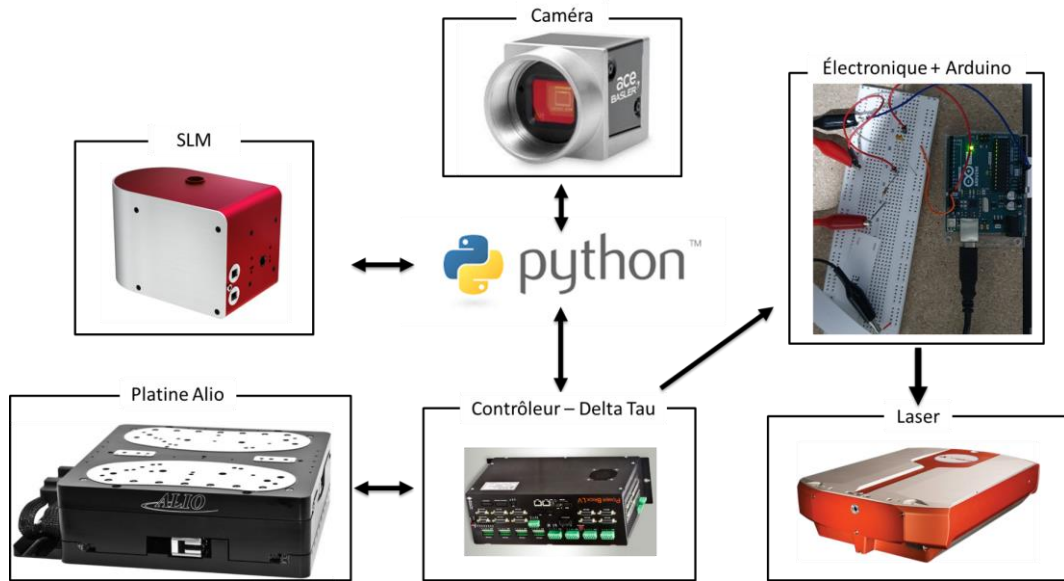


Figure 76. Différents instruments instrumentés avec Python : contrôleur Maestro, contrôleur Alio, caméra CMOS, SLM.

## 2. Analyse des échantillons en microscopie normale et en polarisation croisée

Parmi l'ensemble des clichés réalisés par microscopie conventionnelle ou à polarisation croisée, sont présentés les clichés les plus représentatifs d'un comportement général de l'ensemble des résultats obtenus par souci de concision. Les clichés de microscopie sont classés en fonction du niveau d'endommagement autour du trou : (i) fissuration, (ii) présence de contraintes résiduelles sans fissuration et zone fondue, (iii) endommagement inter-faisceaux sous-surfacique. La fluence présentée dans les résultats expérimentaux correspond à la fluence de chaque sous-faisceau. Les résultats obtenus avec une matrice de deux faisceaux est très souvent utilisée dans ce qui suit pour faciliter la compréhension expérimentale. En effet, pour le cas académique, la matrice à deux faisceaux permet de comprendre dans une configuration la plus simple possible les effets de coopération qui peuvent exister lors de l'irradiation simultanée. Puis sur le plan expérimental, l'utilisation d'une matrice à deux sous-faisceaux permet d'utiliser des fluences beaucoup plus importantes comparées à des matrices où le nombre de sous-faisceaux  $N$  est supérieur à 2. Ainsi, la gamme de fluence est plus importante et, de ce fait, cela permet d'accéder à potentiellement plus de mécanismes. Puis d'autres matrices de sous-faisceaux seront montrées (triangle avec trois sous-faisceaux, matrice  $4 \times 4$ , ...). Dans ce qui suit sont appelés les sous-faisceaux dans les images issues des divers microscopes : les trous / cratères / dommages résultant de la zone irradiée par les sous-faisceaux produits par le SLM. Des ordres supérieurs issus de la matrice des sous-faisceaux sont parfois observables à très forte fluence. Il ne s'agit pas dans cette définition de sous-faisceaux.

## 2.1. Fissuration et contraintes résiduelles

Dans ce qui suit, les niveaux de contraintes atteints lors de l'irradiation simultanée peuvent mener à (i) de la fissuration, (ii) des contraintes résiduelles, mais les deux peuvent coexister. Dans un premier temps sont présentés des résultats pour mettre en évidence les conditions de fissuration (fluence, distance entre les faisceaux, nombre d'impulsions, etc). Uniquement des cas d'irradiation simultanée pour deux sous-faisceaux sont présentés. Puis, d'autres géométries de matrice de sous-faisceaux seront présentées comportant des contraintes résiduelles sans fissuration.

### Fissuration et contraintes résiduelles

La Figure 77 est une photographie au microscope optique pris en surface de l'échantillon pour deux faisceaux dont la distance de centre à centre est variée de 30 à 70  $\mu\text{m}$ . La fréquence de répétition laser est de 50 kHz, la fluence de chaque sous-faisceau est de 57,6 J/cm<sup>2</sup> et 1000 impulsions sont délivrées dans chaque sous-faisceau. Lorsque la distance inter-faisceau est en dessous de 60  $\mu\text{m}$ , des fissures entre les faisceaux sont observables. Au-dessus de 60  $\mu\text{m}$  les fissures entre les faisceaux disparaissent. Lorsque les deux sous-faisceaux sont trop proches et la distance inférieure à 20  $\mu\text{m}$ , il n'est plus possible de clairement les distinguer. Quelques fissures sont également observables autour des trous. La fluence étant très forte, il est aussi possible d'observer les ordres supérieurs de diffraction autour des deux sous-faisceaux. Des zones d'endommagements sub-surface à forte fluence (57,6 J/cm<sup>2</sup>) de part et d'autre des deux trous témoignent de la présence des ordres de diffractions supérieurs dans le profil spatial d'intensité sur cible.

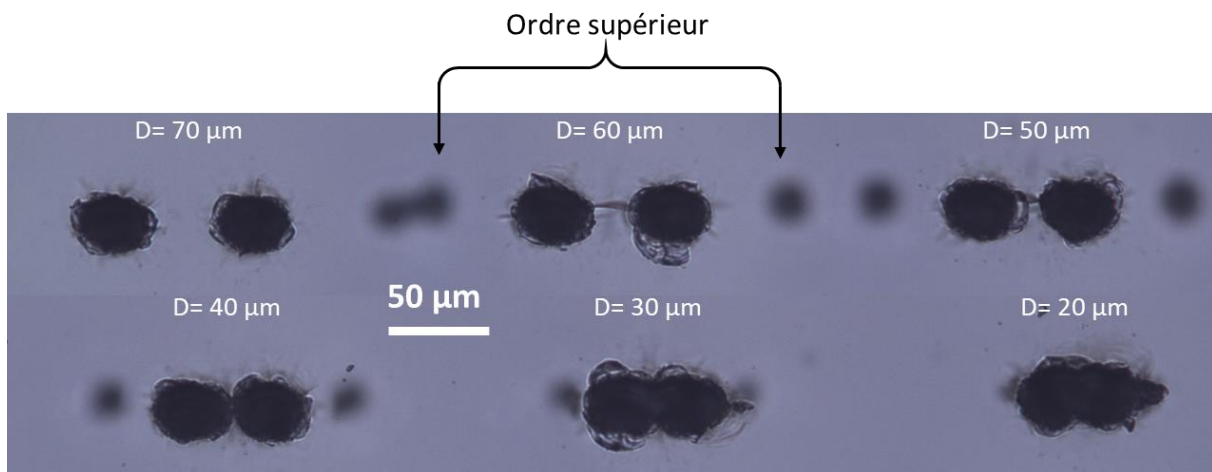


Figure 77. Photographie prise au microscope optique prise en surface de l'échantillon pour deux sous-faisceaux dont la distance de centre à centre est variée de 20 à 70  $\mu\text{m}$ . La fréquence de répétition laser est de 50 kHz, la fluence de chaque sous-faisceau est de 57,6 J/cm<sup>2</sup> et 1000 impulsions sont délivrées dans chaque sous-faisceau.

Ce paragraphe vise à mettre en évidence l'influence de la fréquence de répétition laser. La Figure 78 est une photographie au microscope optique prise en surface de l'échantillon pour deux sous-faisceaux dont la distance de centre à centre est variée de 30 à 70  $\mu\text{m}$ . La fréquence de répétition laser est de 200 kHz, la fluence de chaque sous-faisceau est de 57,6 J/cm<sup>2</sup> et 50 impulsions sont délivrées dans chaque sous-faisceau. Comparé à la Figure 77, deux paramètres ont changés (la fréquence de répétition et le nombre d'impulsions). Les constatations observées dans la Figure 77 sont



identiques pour la Figure 78, mais les phénomènes observables arrivent beaucoup plus tôt, c'est-à-dire avec beaucoup moins d'impulsion lorsque la fréquence de répétition augmente. En effet, dès que 50 impulsions sont utilisées avec une fréquence de répétition laser de 200 kHz, les mêmes conditions de fissuration sont retrouvées, comme dans la Figure 77.

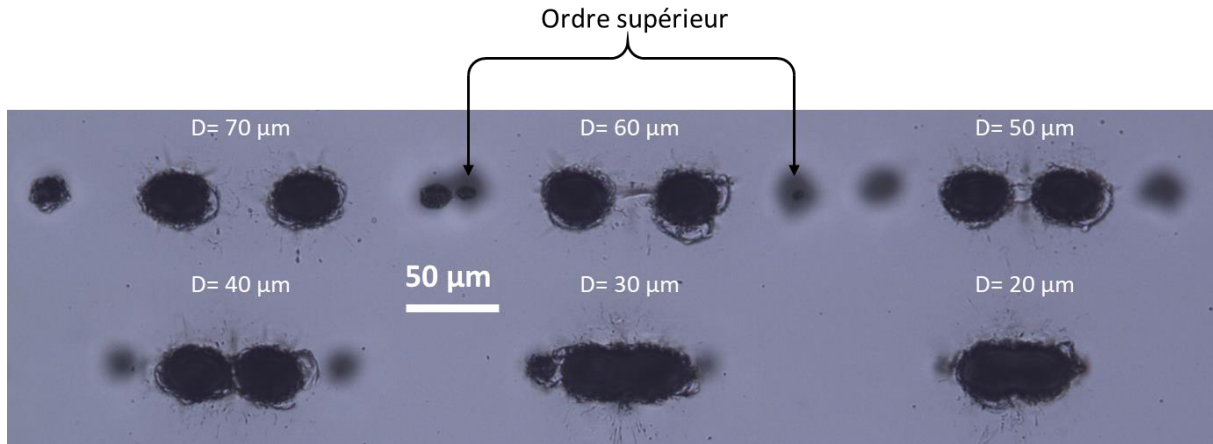


Figure 78. Photographie au microscope optique prise en surface de l'échantillon pour deux sous-faisceaux dont la distance de centre à centre est variée de 20 à 70  $\mu\text{m}$ . La fréquence de répétition laser est de 200 kHz, la fluence de chaque sous-faisceau est de 57,6  $\text{J}/\text{cm}^2$  et 50 impulsions sont délivrées dans chaque sous-faisceau.

En Figure 79 sont représentées les mêmes résultats que ceux de la Figure 78 mais au microscope en polarisation croisée. Dans les conditions de fissurations, i.e lorsque la distance inter-faisceau est inférieure à 60  $\mu\text{m}$ , des zones de contraintes sont observées autour des fissures.

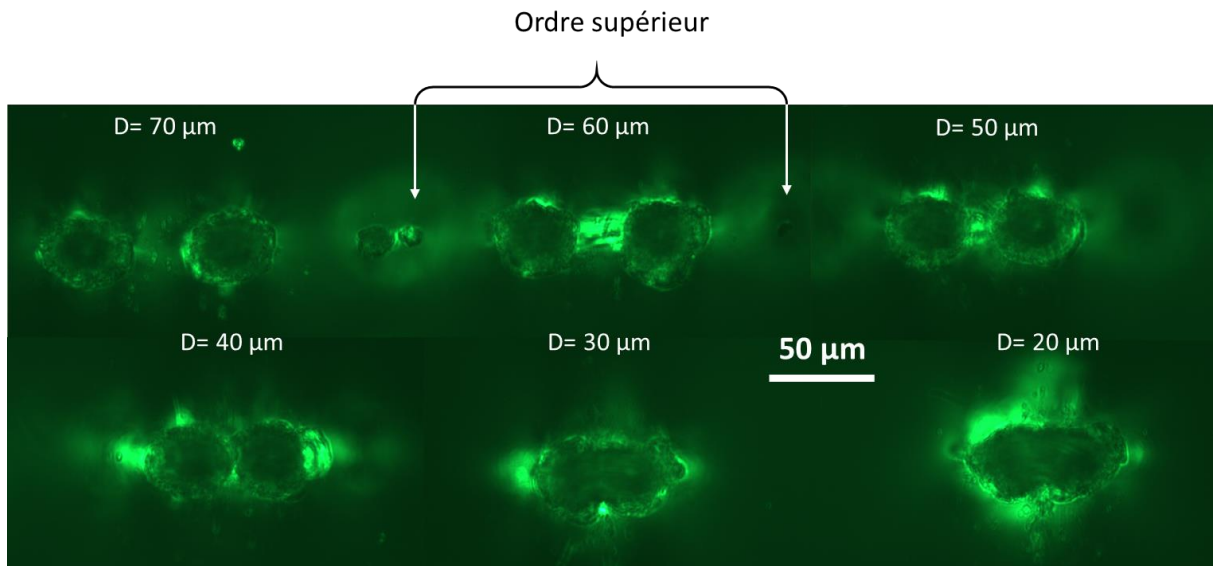


Figure 79. Photographie au microscope à polarisation croisée pris en surface de l'échantillon pour deux sous-faisceaux dont la distance de centre à centre est variée de 20 à 70  $\mu\text{m}$ . La fréquence de répétition laser est de 200 kHz, la fluence de chaque sous-faisceau est de 57,6  $\text{J}/\text{cm}^2$  et 50 impulsions sont délivrées dans chaque sous-faisceau.

Lors de la fissuration, les contraintes relaxent sur celle-ci et la biréfringence est supprimée ce qui explique pourquoi l'intensité observée chute au voisinage d'une fissure. Des halos sont observables autour des sous-faisceaux et des ordres supérieurs. Ils sont de plus en plus forts en intensité au fur et à mesure que les deux sous-faisceaux se rapprochent. Les halos sont non homogènes, car les ordres supérieurs sont trop proches des faisceaux lorsque la distance inter-faisceau est inférieure à  $50\ \mu\text{m}$ , et ils peuvent coopérer.

Ces conditions de fissuration sont uniquement obtenues pour des fluences très élevées ( $57,6\ \text{J}/\text{cm}^2$ ). Aucune autre fissuration n'a pu être observée dans les autres configurations étudiées avec deux sous-faisceaux. C'est-à-dire avec des fréquences de répétition laser de  $50$  et  $200\ \text{kHz}$ , avec une fluence des sous-faisceaux variants de  $7,6$  ;  $12,6$  et  $30\ \text{J}/\text{cm}^2$ , avec des distances comprises entre  $15$  et  $70\ \mu\text{m}$  et un nombre d'impulsions variant de  $10$  à  $10000$ . Pour d'autres structures étudiées comme trois sous-faisceaux répartis en triangle (comme illustré dans la Figure 73), une fluence maximale de  $35,5\ \text{J}/\text{cm}^2$  a pu être utilisée sans qu'aucune fissuration ne soit observée ; quels que soient la fréquence de répétition laser, le nombre d'impulsions et la distance entre les sous-faisceaux. Il en est de même pour toutes les autres matrices de sous-faisceaux étudiées. C'est-à-dire avec des matrices de faisceaux ( $2 \times 8$  ;  $4 \times 4$  ;  $5 \times 5$  ;  $6 \times 6$ ) où la fluence de  $57,6\ \text{J}/\text{cm}^2$  ne peut être atteinte dans chaque sous-faisceau.

#### Contraintes résiduelles sans fissuration et zone fondue

Pour des fluences plus faibles qu'à celles testées ( $57,6\ \text{J}/\text{cm}^2$ ), uniquement des zones de contraintes résiduelles sont observables en microscopie à polarisation croisée, sans fissuration. La Figure 80 est une photographie au microscope à polarisation croisée d'une vue en surface de l'échantillon pour une matrice de faisceau  $4 \times 4$  dont la distance de centre à centre est de  $50$  et  $40\ \mu\text{m}$ .

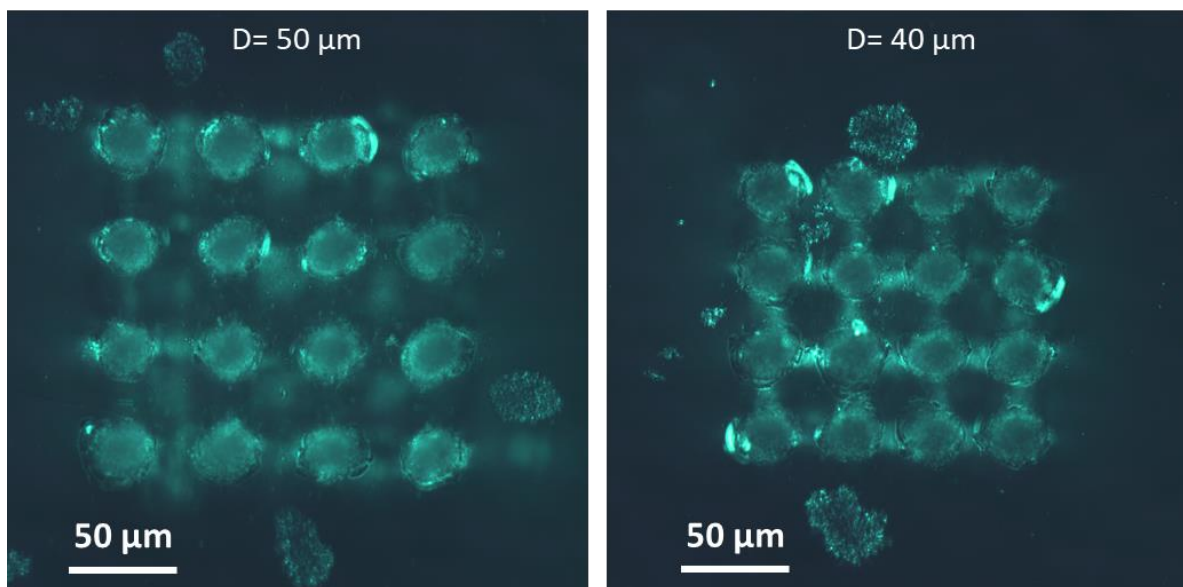


Figure 80. Photographie au microscope à polarisation croisée d'une vue en surface de l'échantillon pour une matrice de faisceau  $4 \times 4$  dont la distance de centre à centre est de  $50$  et  $40\ \mu\text{m}$ . La fréquence de répétition est de  $200\ \text{kHz}$ , la fluence de chaque sous-faisceau est de  $9,2\ \text{J}/\text{cm}^2$  et  $100$  impulsions sont délivrées dans chaque sous-faisceau.



La fréquence de répétition laser est de **200 kHz**, la fluence de chaque sous-faisceau est de **9,2 J/cm<sup>2</sup>** et **100 impulsions** sont délivrées dans chaque sous-faisceau. Pour une distance inter-faisceau de **40 μm**, un quadrillage de contraintes centré sur les sous-faisceaux est observable. Lorsque la distance inter-faisceau augmente (supérieure à **40 μm**), le quadrillage disparaît.

Ce quadrillage est aussi observable dans d'autres conditions. La Figure 81 est une photographie au microscope à polarisation croisée d'une vue en surface de l'échantillon pour une matrice de faisceau **5 × 5** dont la distance **D** de centre à centre est de **60 ; 50 et 40 μm**. La fréquence de répétition laser est de **200 kHz**, la fluence de chaque sous-faisceau est de **2,7 J/cm<sup>2</sup>** et **1000 impulsions** sont délivrées dans chaque sous-faisceau. Pour une distance inter-faisceau de **40 μm**, le matériau a fondu suivant la même forme que la matrice. Pour une distance inter-faisceau de **50 μm**, un quadrillage de contraintes centré sur les sous-faisceaux est très prononcé. Il est possible de remarquer qu'au centre de la matrice, l'intensité de l'image est un peu plus faible. Il se pourrait qu'à cet endroit précis le matériau ait commencé à fondre dû à une trop forte température, relaxant quelques contraintes. Pour une distance inter-faisceau de **60 μm**, le quadrillage s'estompe. Il est à noter qu'un quadrillage similaire centré sur les faisceaux est observable uniquement au microscope à polarisation croisée pour d'autres matrices de sous-faisceaux avec des conditions d'irradiation similaires.

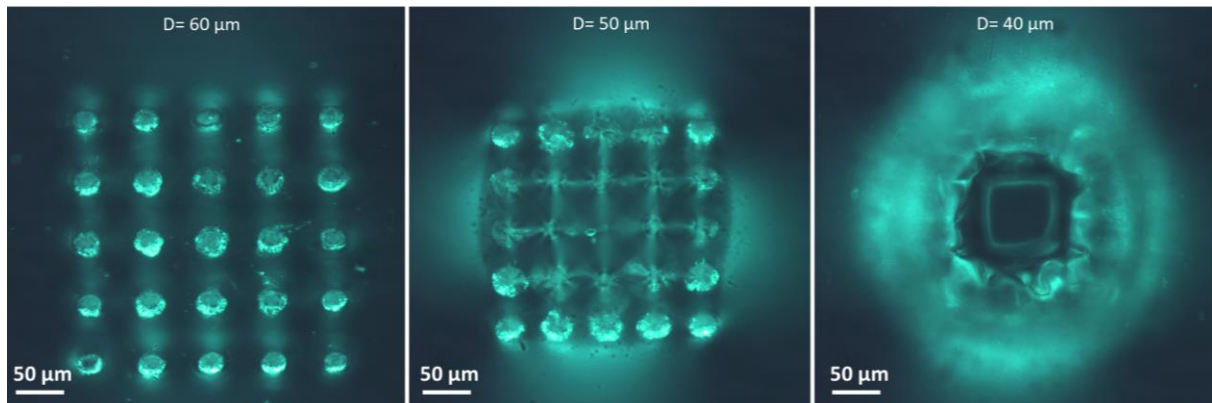


Figure 81. Photographie au microscope à polarisation croisée d'une vue en surface de l'échantillon pour une matrice de faisceau **5 × 5** dont la distance **D** indiquée en haut des trois photos, correspond à la distance de centre à centre entre les sous-faisceaux de **50, 40 et 30 μm**. La fréquence de répétition laser est de **200 kHz**, la fluence de chaque sous-faisceau est de **2,7 J/cm<sup>2</sup>** et **1000 impulsions** sont délivrées dans chaque sous-faisceau.

Pour résumer, le quadrillage de contrainte centré sur les faisceaux apparaît en surface, il dépend de la fluence et de la fréquence de répétition laser. Le quadrillage de contraintes est de plus en plus prononcé au fur et à mesure que la distance inter-faisceau diminue. Aussi, il apparaît quasi systématiquement lorsque le matériau commence à fondre en dehors des zones ablatées par les sous-faisceaux Figure 81(b). Pour une matrice de sous-faisceaux, une fréquence de répétition laser, un nombre d'impulsions et une fluence de sous-faisceau fixées, lorsque la distance inter-faisceau diminue, de fortes zones affectées thermiquement apparaissent et peuvent fondre le matériau sur toute son épaisseur au point de provoquer son ablation. Pour finir, pour une matrice de sous-faisceaux, un nombre d'impulsions, une fluence et une distance inter-faisceau fixées, lorsque la fréquence de répétition augmente de **50 à 200 kHz**, les zones affectées thermiquement sont plus importantes.

## 2.2. Endommagement inter-faisceaux sous-surfacique en segment

Bien qu'aucune fissuration ne soit observable à plus faible fluence, il y a d'autres phénomènes identifiables en plus des contraintes résiduelles observables en microscopie à polarisation croisée. Des conditions d'irradiation différentes sont ici présentées afin de montrer ce dernier phénomène qui résulte de l'irradiation simultanée. Le nombre d'impulsions joue un rôle déterminant dans ce processus.

La Figure 82 est une photographie au microscope optique pris en surface de l'échantillon pour deux sous-faisceaux dont la distance de centre à centre est variée de 30 à 70  $\mu\text{m}$ . La fréquence de répétition est de 200 kHz, la fluence de chaque sous-faisceau est de 12,6  $\text{J}/\text{cm}^2$  et 100 impulsions sont délivrées dans chaque sous-faisceau. Un écaillage est observable autour des sous-faisceaux sur une zone bien plus importante comparée à plus forte fluence. Il n'y a pas de fissuration ou de zone affectée thermiquement. Une fluence plus faible permet de mieux différencier la présence des deux sous-faisceaux lorsque la distance entre les deux sous-faisceaux est inférieure à 20  $\mu\text{m}$ . Les ordres de diffraction supérieurs à un ne sont plus observables pour cette fluence modérée.

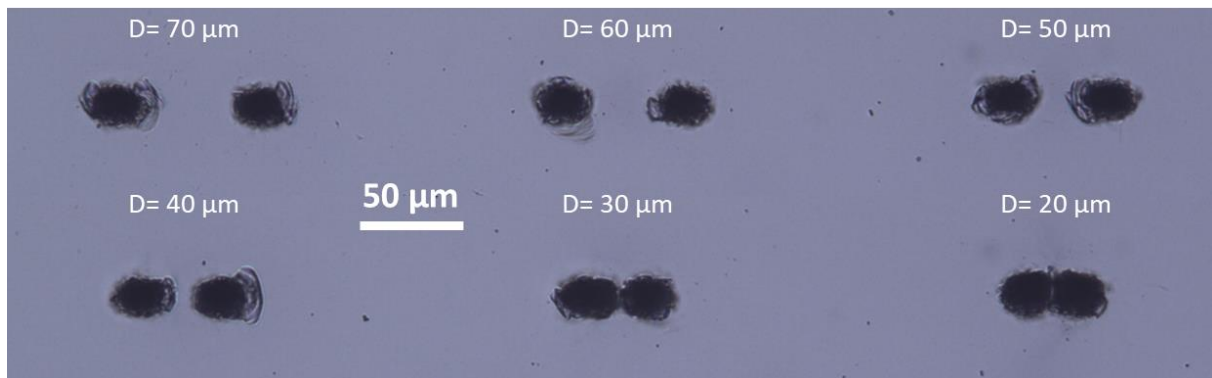


Figure 82. Photographie au microscope optique prise en surface de l'échantillon pour deux sous-faisceaux dont la distance de centre à centre est variée de 20 à 70  $\mu\text{m}$ . La fréquence de répétition laser est de 200 kHz, la fluence de chaque sous-faisceau est de 12,6  $\text{J}/\text{cm}^2$  et 100 impulsions sont délivrées dans chaque sous-faisceau.

En Figure 83 sont présentées exactement les mêmes conditions d'expérience que la Figure 82 mais le nombre d'impulsions délivré est augmenté à 10000 impulsions (soit 100 fois plus que pour la Figure 82). Une vue de dessus et dans le volume de l'échantillon sont représentées. Seuls les clichés correspondant aux distances inter-faisceaux de 50 à 70  $\mu\text{m}$  sont montrés. La fréquence de répétition laser est toujours de 200 kHz, et la fluence des sous-faisceaux est toujours de 12,6  $\text{J}/\text{cm}^2$ . Contrairement au cas où 100 impulsions sont délivrées, l'écaillage est moins perceptible. En effet, lorsque le nombre d'impulsions augmente, il semblerait que le diamètre des trous soit plus important augmentant la zone ablatée et diminuant la zone d'écaillage. Lorsque la distance inter-faisceau est inférieure à 50  $\mu\text{m}$ , une zone étroite et sombre apparaît pour une vue de dessus située à équidistance entre les deux sous-faisceaux. Une vue dans le volume de l'échantillon en Figure 83 permet de mieux observer ce phénomène. Il s'agit d'un segment perpendiculaire à l'axe qui passe par le centre des deux sous-faisceaux dans le volume du matériau, alors que les contraintes résiduelles et fissures précédemment observées étaient localisées en surface du matériau. Il est à noter que ce phénomène

est observable lorsqu'un grand nombre d'impulsions est utilisé et ce quelle que soit la fréquence de répétition laser utilisée. Aussi, lorsque la distance inter-faisceau est suffisamment grande, quelle que soit la fréquence de répétition laser, ce phénomène n'est pas perceptible comme le montre Figure 83 pour des distances inter-faisceaux supérieures à 60  $\mu\text{m}$ .

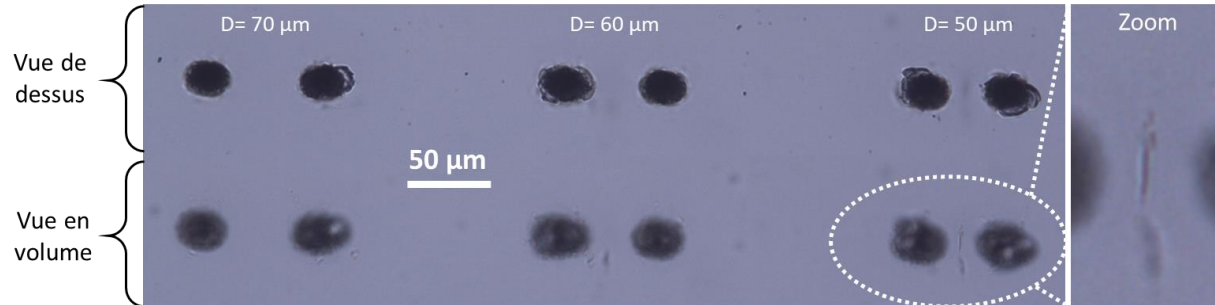


Figure 83. Photographie au microscope optique prise en surface et dans le volume de l'échantillon pour deux sous-faisceaux dont la distance de centre à centre est variée de 50 à 70  $\mu\text{m}$ . La fréquence de répétition laser est de 200 kHz, la fluence de chaque sous-faisceau est de 12,6  $\text{J}/\text{cm}^2$  et 10000 impulsions sont délivrées dans chaque sous-faisceau.

Ce phénomène est également observable pour d'autres matrices de sous-faisceaux. La Figure 84 est une photographie au microscope optique prise en surface de l'échantillon pour trois sous-faisceaux répartis selon un triangle équilatéral dont la distance inter-faisceau est variée de 50 à 70  $\mu\text{m}$ . La fréquence de répétition laser est de 200 kHz, la fluence de chaque sous-faisceau est de 6,1  $\text{J}/\text{cm}^2$  et 1000 impulsions sont délivrées dans chaque sous-faisceau. Contrairement au cas à deux sous-faisceaux, ici une fluence un peu plus faible est utilisée (6,1  $\text{J}/\text{cm}^2$  au lieu de 12,6  $\text{J}/\text{cm}^2$  dans le cas à deux sous-faisceaux). Les segments sont toujours situés à équidistance des faisceaux et forme pour cette matrice de sous-faisceaux (répartis selon un triangle) une forme d'étoile. L'utilisation de trois faisceaux équidistants semble donc favoriser l'apparition de cette structure pour une fluence et un nombre d'impulsions plus faibles. Il est important d'insister sur le fait que la fréquence de répétition laser n'influe pas sur l'apparition de ces segments.

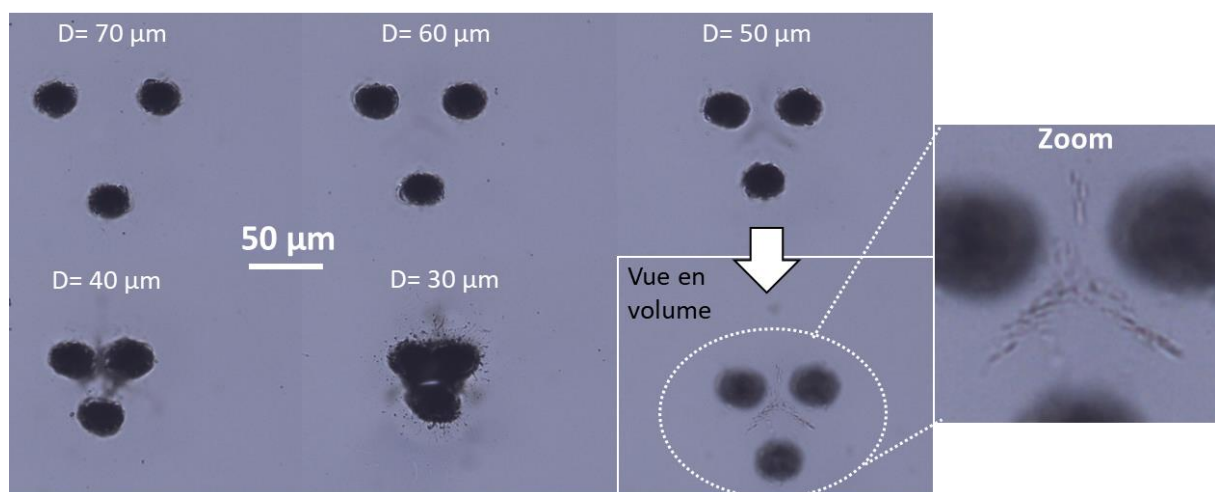


Figure 84. Photographie au microscope optique prise en surface de l'échantillon pour trois sous-faisceaux dont la distance de centre à centre est variée de 50 à 70  $\mu\text{m}$ . La fréquence de

répétition laser est de **200 kHz**, la fluence de chaque sous-faisceau est de **6,1 J/cm<sup>2</sup>** et **1000** impulsions sont délivrées dans chaque sous-faisceau.

Un autre exemple de segment est donné en Figure 85. Il s'agit d'une photographie au microscope à polarisation croisée prise en surface et dans le volume de l'échantillon pour une matrice de sous-faisceau  $5 \times 5$  dont la distance de centre à centre est de **60  $\mu\text{m}$** . La fréquence de répétition laser est de **200 kHz**, la fluence de chaque sous-faisceau est de **6,1 J/cm<sup>2</sup>** et **1000** impulsions sont délivrées dans chaque sous-faisceau. Un grand nombre d'impulsions est nécessaire pour obtenir l'apparition de segments. Ils sont toujours formés sous la surface de l'échantillon. Un maximum d'intensité est obtenu en un point équidistant aux quatre sous-faisceaux. Ensuite, les segments sont orientés perpendiculairement aux axes passant entre deux sous-faisceaux. Il est à noter que l'intensité et la visibilité des segments est de plus en plus importante au fur et à mesure que le nombre d'impulsions augmente et que la distance inter-faisceau diminue.

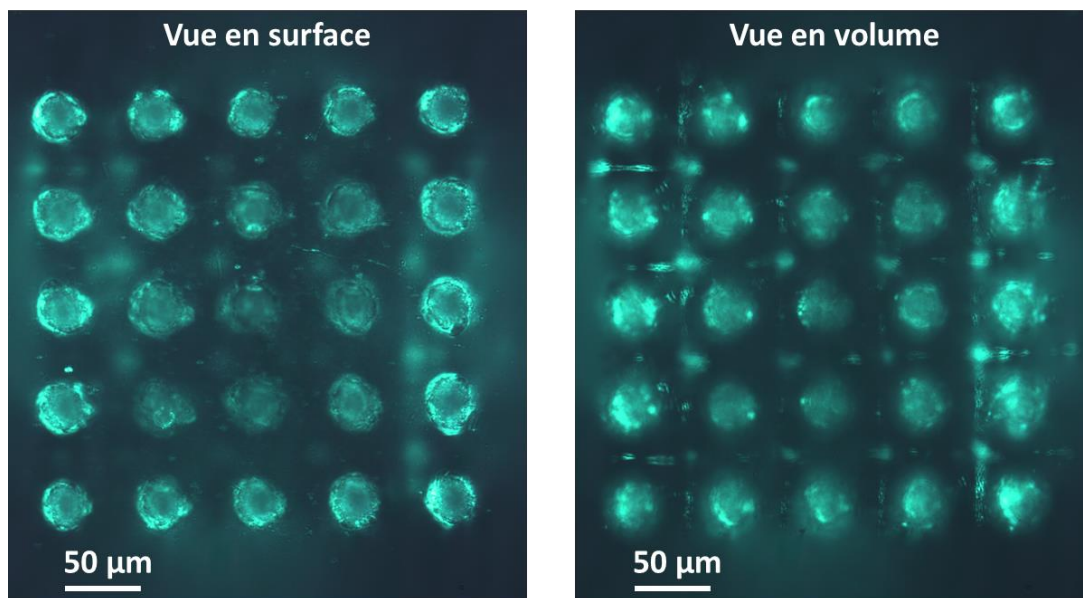


Figure 85. Photographie au microscope à polarisation croisée d'une vue en surface de l'échantillon et dans le volume de l'échantillon pour une matrice de faisceau  $5 \times 5$  dont la distance de centre à centre est de **60  $\mu\text{m}$** . La fréquence de répétition laser est de **200 kHz**, la fluence de chaque sous-faisceau est de **6,1 J/cm<sup>2</sup>** et **1000** impulsions sont délivrées dans chaque sous-faisceau.

Pour résumer, la structure en segment est toujours localisée sous la surface et est située à équidistance des faisceaux. L'axe du segment est toujours perpendiculaire à l'axe qui relie deux sous-faisceaux. Plus le nombre d'impulsions est important et la distance inter-faisceau faible, et plus sont prononcés les segments. La fréquence de répétition laser n'influe pas sur l'apparition de cette structure en segment. Le segment peut être observé en microscopie normale ou avec un microscope à polarisation croisée. Le fait que celui-ci soit observable en microscopie normale en volume permet d'identifier cette zone comme endommagée.

### 3. Modélisation de la formation des contraintes par une approche thermo-élastique

#### 3.1. Description du modèle thermo-élastique

Cette section est consacrée à la modélisation de la réponse thermo-élastique du matériau sous l'irradiation de plusieurs impulsions laser. Suite à l'irradiation d'une impulsion laser ultra courte, la température électronique et ionique thermalise en quelques picosecondes (voir Section 2.1 du Chapitre 1). Sous l'élévation de la température de la matrice, de forts gradients thermiques apparaissent et dilatent le matériau dans la zone du dépôt d'énergie. Sous l'effet de la dilatation thermique des déformations apparaissent et induisent des contraintes et des ondes acoustiques. Dans l'étude du perçage laser dans le verre, une charge thermique significative est induite dont la relaxation peut conduire à l'apparition de contraintes mécaniques résiduelles, voire à la rupture du verre par fissuration. L'approche que nous avons choisie consiste à calculer les gradients de température afin de déterminer la carte thermique à l'échelle macroscopique dans le verre et d'en déduire des zones de contraintes et la tenue mécanique du matériau. Le modèle n'a pas pour but d'être complètement quantitatif, mais il a été développé pour être qualitatif afin d'interpréter les résultats expérimentaux. Les zones étudiées sont situées en dehors des zones irradiées (zone d'ablation). Comme vu dans le Chapitre 1, Section 2, la réponse thermo-élastique peut être modélisé en couplant les Eqs. (35)-(38)-(39)-(40).

#### Hypothèses du modèle et équations utilisées.

Le modèle numérique développé est résolu en deux dimensions de l'espace afin de réduire les temps de calculs pour effectuer des études paramétriques et utiliser des paramètres rendant compte de ceux utilisés dans l'expérience. D'autre part, nous faisons l'hypothèse de gradients thermiques orientés principalement dans le plan principal de l'échantillon (en surface). En effet, la taille de la direction transverse (épaisseur de l'échantillon et axe de propagation du faisceau laser) est significativement plus petite que celle du plan transverse. Aussi, lorsque le perçage est réalisé, la structure est invariante par une translation le long de l'épaisseur de l'échantillon.

Un modèle très utilisé pour calculer les températures est le modèle à deux températures composé de deux sous-systèmes : température électronique et température ionique. Il a été établi en supposant un retour à l'équilibre entre deux impulsions successives (Eq.(35) du Chapitre 1). Chaque impulsion voit donc une matière figée. Pour des impulsions courtes, inférieures au temps de thermalisation électron-phonon qui est de l'ordre de la dizaine de picosecondes (c'est notre cas dans nos études, car la durée d'impulsion est de **500 fs**), l'énergie absorbée est supposée être contenue exclusivement dans les électrons juste après irradiation laser. L'équilibre thermique électronique et ionique sera alors atteint après l'impulsion laser. En supposant un couplage électron-phonon de **100 %**, c'est-à-dire que l'intégralité de l'énergie des électrons est transférée aux phonons (pas de perte) et par conservation de l'énergie, la température maximale atteinte à l'équilibre est  $T_e = T_i = T$ . En général, et ce sera le cas dans cette étude, la capacité calorifique des électrons est supposée comme négligeable devant la capacité calorifique ionique ( $C_i \gg C_e$ ) [63]. La température de la matrice  $T_i$  suite au dépôt d'énergie par irradiation laser est alors donnée par la relation suivante [19] :



$$T_i \approx \frac{Q}{\rho C_i} \text{ avec } (C_i \gg C_e) \quad (67)$$

Où  $\rho$  et  $C_i$  sont respectivement la masse volumique et la capacité calorifique du matériau,  $Q$  est la densité d'énergie laser absorbée (elle peut être calculée en 2D en utilisant le modèle présenté dans la Section 2 du Chapitre 2). Le modèle à deux températures se réduit alors à une simple équation de diffusion de la chaleur donnée par la relation suivante :

$$\rho \cdot C_i \frac{\partial T}{\partial t} = \lambda_{th} \Delta(T) + Q \quad (68)$$

Où  $\lambda_{th}$  est la conductivité thermique du matériau supposée constante. L'annexe F présente le schéma numérique et la validation du modèle thermique par une solution analytique.

L'augmentation brutale de la température de la matrice après irradiation laser produit ainsi un déplacement qui initie des ondes acoustiques qui vont se propager dans le matériau. Ces ondes peuvent être calculées par l'équation du mouvement élastique donné dans l'Eq. (38). Ces ondes sont des ondes élastiques longitudinales et transverses, la vitesse de ces ondes dans la silice est respectivement d'environ **5 km/s** et **3 km/s**. Cependant, dans l'étude d'un faisceau unique délivré et cadencé à la fréquence de répétition du laser, le temps séparant deux impulsions laser consécutives est beaucoup plus grand devant le temps nécessaire à une onde acoustique pour parcourir la distance séparant deux impulsions laser consécutives. Par exemple, pour une fréquence de répétition laser de **1 MHz** et en considérant une vitesse de **3 km/s**, l'onde générée par la première irradiation a parcouru **3 mm**. Les techniques de déflexion de faisceau ne permettent pas de parcourir de telle distance en **1  $\mu$ s**. L'eq. (38) se réduit alors à une simple équation d'équilibre  $\frac{\delta \sigma_{ik}}{\delta x_{ik}} = \vec{0}$ . Le code élastique développé est donc un code statique. Il ne rend donc pas compte de la dynamique des ondes mécaniques élastiques générées. Celui-ci se base uniquement sur les contraintes induites par la dilatation thermique du matériau suite à l'irradiation laser. Aussi, le modèle numérique développé ne rend pas compte des mouvements hydrodynamiques lors de la relaxation de la matière chauffée donnant lieu à des variations de densité de la matière et les gradients de pression dans la zone irradiée. En effet, les mouvements hydrodynamiques sont négligés, car les zones d'intérêts étudiées sont situées en dehors de la zone d'ablation. Finalement, pour un gradient de température et un solide isotrope, le vecteur déplacement  $\vec{u}$  est alors donné par l'Eq.(40) (équation de Navier) présentée dans le Chapitre 1 Section 2.2. Cette équation est rappelée ci-après.

$$\frac{3(1-\nu)}{1+\nu} \overrightarrow{grad}(div(\vec{u})) - \frac{3(1-2\nu)}{2(1+\nu)} \overrightarrow{rot}(\overrightarrow{rot}(\vec{u})) = \alpha \overrightarrow{grad}(T)$$

Où  $\alpha$  est le coefficient de dilatation thermique, il est supposé indépendant de la température.  $\nu$  est le coefficient de Poisson,  $\vec{u}$  le vecteur déplacement et  $T$  la température de la matrice.

## Résolution de l'équation de Navier et calcul des contraintes induites par dilatation thermique

L'Eq.(40) est résolue par un système d'équations dans les deux dimensions de l'espace (x,y) d'un repère cartésien par la relation suivante :

$$\vec{u}M = \vec{b} \quad (69)$$

Où  $\vec{u}$  est le vecteur déplacement, M la matrice et  $\vec{b}$  le vecteur gradient de température. L'équation est résolue numériquement par la méthode des différences finies. Le vecteur  $\vec{b}$  est calculé à chaque instant grâce à l'Eq.(68), ce qui permet de connaître la cartographie de la température en 2D dans la matrice à chaque instant. Le système de l'Eq.(69) est résolu en conditionnant la matrice M, puis en procédant par la méthode dite du gradient conjugué qui est une technique de résolution itérative. Le vecteur déplacement  $\vec{u}$  donne lieu à des petites déformations (régime élastique) calculées avec l'Eq.(39) rappelé ci-dessous :

$$\bar{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} \\ \epsilon_{yx} & \epsilon_{yy} \end{pmatrix}$$

Avec :

$$\epsilon_{ik} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_k} + \frac{\partial u_k}{\partial x_i} \right)$$

Du tenseur  $\bar{\epsilon}$ , est calculé le tenseur contrainte  $\bar{\sigma}$  suivant la relation en utilisant  $\frac{\delta \sigma_{ik}}{\delta x_{ik}} = \vec{0}$  [92] :

$$\bar{\sigma} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} \\ \sigma_{yx} & \sigma_{yy} \end{pmatrix}$$

Avec :

$$\begin{aligned} \sigma_{xx} &= \frac{E_{yg}}{(1+\nu)(1-2\nu)} [(1-\nu)\epsilon_{xx} + \nu\epsilon_{yy}] \\ \sigma_{yy} &= \frac{E_{yg}}{(1+\nu)(1-2\nu)} [(1-\nu)\epsilon_{yy} + \nu\epsilon_{xx}] \\ \sigma_{xy} &= \frac{E_{yg}}{(1+\nu)} \epsilon_{xy} \end{aligned} \quad (70)$$

Où  $E_{yg}$  et  $\nu$  sont respectivement le module de Young et le coefficient de Poisson du matériau. Le calcul et le développement du code avec le schéma numérique utilisé sont plus largement détaillés en Annexe H. Aussi, le modèle a été vérifié et validé par des solutions analytiques calculées dans les Eqs. (88)-(101) de l'Annexe H. Dans le modèle, lorsque la température d'ébullition du matériau est dépassée, les déformations sont annulées, puisque le comportement solide du matériau n'a plus lieu d'être.

## Comparaison des contraintes aux limites admissibles par le matériau

Pour prédire le comportement du solide (fissure, rupture,...) vis-à-vis des contraintes induites, il est nécessaire de se placer dans un référentiel, repère dans lequel les contraintes sont maximisées. Ce référentiel s'appelle le repère principal, trois grandeurs de contraintes peuvent être calculées :  $\sigma_I$ ,  $\sigma_{II}$

et  $\tau_{xy}$  respectivement calculé avec l'Eq. (45) et l'Eq. (46).  $\sigma_I$ ,  $\sigma_{II}$  correspondent respectivement aux contraintes maximales de traction et de compression (lorsque  $\sigma_{II} < 0$ ).  $\tau_{xy}$  est la contrainte maximale de cisaillement (pour plus d'informations voir Section 2.3 du Chapitre 1). Les valeurs des contraintes maximales de traction, compression et de cisaillement sont comparées aux limites théoriques moyennes admissibles par le matériau en utilisant les Eqs. (47)-(49) selon les critères de Mohr. Lorsque la limite est dépassée, la rupture du matériau peut apparaître. Les paramètres de simulations utilisés pour le code thermo-élastique sont résumés dans le Tableau 14. Les seuils de résistance moyenne du matériau peuvent être cependant plus faibles (jusqu'à un ordre de grandeur) en raison de défauts qui peuvent fragiliser le matériau [173].

Tableau 14. Paramètres de simulation

Capacité calorifique massique $C_t$	<b>800 J · Kg · K<sup>-1</sup></b>
Masse volumique $\rho$ [170,171]	<b>2,27 · 10<sup>3</sup> Kg · m<sup>-3</sup></b>
Température ambiante $T_0$	<b>300 K</b>
Conductivité thermique $k_t$ [174,175]	<b>1,4 W · m<sup>-1</sup> · K<sup>-1</sup></b>
Module de Young $E_{yg}$ [170,171]	<b>73 · 10<sup>9</sup> Pa</b>
Coefficient de Poisson $\nu$ [175]	<b>0,17</b>
Coefficient de dilatation thermique $\alpha$ [170,171]	<b>0,5 · 10<sup>-6</sup> K<sup>-1</sup></b>
Limite de résistance moyenne en compression $L_c$ [176]	<b>10 · 10<sup>9</sup> Pa</b>
Limite de résistance moyenne en traction $L_t$ [176]	<b>8 · 10<sup>9</sup> Pa</b>
Limite de résistance moyenne de cisaillement	<b>4 · 10<sup>9</sup> Pa</b>

Pour résumer, le code thermo-élastique développé permet de calculer les contraintes induites par la charge thermique de plusieurs impulsions consécutives réparties spatialement et temporellement. Le code développé est un code en deux dimensions spatiales (il ne possède pas de profondeur). Le modèle surévalue les contraintes, car le modèle est purement élastique et il n'y a pas de plasticité. En effet, celui-ci a été construit dans le cadre de petites déformations i.e pour des déformations réversibles. Aussi, la viscosité du matériau est supposée être négligeable. Le modèle est plus restrictif que la réalité, mais l'hypothèse est raisonnable, car la zone plastique d'un verre est très faible. De plus, les transitions de phase n'étant pas prédites par le modèle, la température y est d'autant plus surévaluée. Lorsque la température atteint la température d'ébullition, la déformation est annulée. Le modèle n'a pas pour but d'être complètement quantitatif, mais il a été développé pour être qualitatif afin d'interpréter les résultats expérimentaux. Les contraintes calculées dans le modèle élastique sont comparées aux seuils de rupture théorique, ce qui permet de potentiellement prédire des zones de ruptures suite à l'accumulation successive de plusieurs impulsions.

### 3.2. Résultats de simulation

Dans ce qui suit, des résultats de simulation thermique et thermo-élastique sont présentés. En premier, des études thermiques sont réalisées. Les résultats présentés sont issus du modèle 2D de la diffusion thermique précédemment présentée. Un dépôt d'énergie a été injecté dans le code de diffusion. Il est utilisé comme terme source dans l'équation de diffusion thermique. Plusieurs cas sont étudiés : la température en fonction du temps prise à différentes distances du faisceau; l'influence de la fréquence de répétition laser ; et l'influence de l'irradiation simultanée de plusieurs sous-faisceaux sur l'évolution de la température. Ensuite des résultats issus du code thermo-élastique sont présentés



pour différents cas d'études, comme : les contraintes générées par un faisceau de faible densité d'énergie, l'évolution des contraintes dans le temps, les contraintes induites par l'irradiation simultanée de deux sous-faisceaux pour une distance variable, et pour finir les contraintes induites par l'irradiation d'une matrice  $4 \times 4$  de sous-faisceaux.

### 3.2.1. Résultats thermiques

Les résultats présentés sont issus du code de diffusion thermique précédemment décrit. Il est important de rappeler que les changements de phase ne sont pas modélisés. Lorsque la température de transition vitreuse est atteinte, celui-ci se comporte toujours comme un solide parfait. Aussi, en réalité, une ablation se produit avec une éjection de la matière, alors que dans le modèle la matière est toujours présente et elle peut toujours être chauffée, les températures sont alors surestimées.

#### Influence de la distance

La Figure 86(a)-(b) représente la température en fonction du temps à différentes positions du faisceau : à un rayon de  $0 \mu\text{m}$  du faisceau (au centre),  $14$  ;  $28$  ; et  $42 \mu\text{m}$  respectivement pour un faisceau de  $10$  et  $20 \mu\text{m}$  de diamètre à  $1/e^2$  pour une énergie déposée crête de  $1,8 \text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$ , le seuil de modification est obtenu pour une densité d'énergie de  $\sim 4 \text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$ . La fréquence de répétition est de  $100 \text{ kHz}$ . Pour un faisceau de  $10 \mu\text{m}$ , (Figure 86(a)), au centre du faisceau et entre deux tirs laser, la chaleur a significativement diffusée, ce qui explique la baisse observée. Lorsqu'une nouvelle impulsion illumine le matériau, celle-ci le chauffe et la température diffuse dans celui-ci et ainsi de suite. Comme entre deux tirs consécutifs la température n'est pas redescendue à sa valeur initiale, alors la température augmente avec le nombre de tirs laser. Ce phénomène est appelé accumulation thermique.

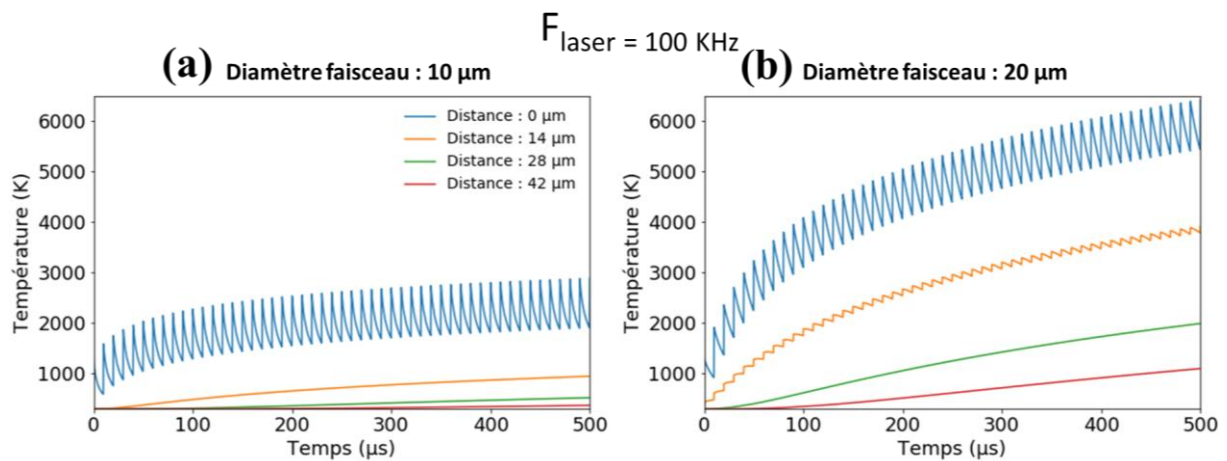


Figure 86. Calcul de la température au centre d'un faisceau ( $0 \mu\text{m}$ ) et à  $14$  ;  $28$  ;  $42 \mu\text{m}$  de distance du faisceau pour une fréquence de répétition laser de  $100 \text{ kHz}$  respectivement pour un faisceau de diamètre à  $1/e^2$  de  $10$  et  $20 \mu\text{m}$  et une densité d'énergie crête de  $1,8 \text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$ .

Pour des distances plus importantes autour du faisceau ( $14$ ,  $28$  et  $42 \mu\text{m}$ ), la température augmente également progressivement avec le nombre d'impulsions. Cependant, les fluctuations de température

sont beaucoup moins importantes, car le dépôt d'énergie est quasiment nul à l'extérieur du faisceau d'une part et avec la distance, les gradients de température sont lissés par la diffusion thermique d'autre part. Pour un faisceau de  $20\ \mu\text{m}$  (Figure 86(b)), les mêmes tendances sont retrouvées. Cependant, les températures sont plus élevées après plusieurs tirs laser, car la surface du dépôt d'énergie est plus grande. En effet, comparé à un faisceau de  $10\ \mu\text{m}$ , il y a plus d'énergie à dissiper dans un faisceau de  $20\ \mu\text{m}$ , ce qui prend plus de temps. Aussi, la taille du dépôt d'énergie devient plus importante que la longueur caractéristique de diffusion à l'échelle de temps considérée. Entre deux tirs consécutifs, la température est donc globalement plus importante. Lorsque les distances sont supérieures à la longueur caractéristique de diffusion thermique (Eq. (37) de la Section 2.1 du Chapitre 1) qui est d'environ  $3\ \mu\text{m}$  pour une fréquence de répétition laser de  $100\ \text{kHz}$  (soit  $10\ \mu\text{s}$ ), la distance lisse les fluctuations thermiques.

### Influence de la fréquence de répétition laser

La Figure 87 représente la température en fonction du temps avec quatre fréquences de répétition laser différentes pour un total de 50 impulsions et un diamètre de faisceau de  $10\ \mu\text{m}$  à  $1/e^2$  d'une densité d'énergie déposée crête de  $1,8\ \text{kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$ . Comme vue précédemment dans la Figure 86(a), pour une fréquence de répétition de  $100\ \text{kHz}$ , (chaque impulsion arrive respectivement après  $10\ \mu\text{s}$ ), la chaleur diffuse significativement avant qu'une seconde impulsion arrive. Pour des fréquences plus élevées à  $500\ \text{kHz}$ , une impulsion arrive toutes les  $5\ \mu\text{s}$ . Après  $5\ \mu\text{s}$ , la chaleur a partiellement diffusée dans le matériau et la température au centre du faisceau augmente avec le nombre d'impulsions par effet d'accumulation thermique. Avec une fréquence de répétition de  $1000\ \text{kHz}$ , le temps successif entre deux impulsions est de  $1\ \mu\text{s}$ . La chaleur n'a eu que très peu de temps pour diffuser dans le matériau. Ainsi, lorsque la prochaine impulsion irradie le matériau, la densité d'énergie déposée par la seconde impulsion augmente significativement la température.

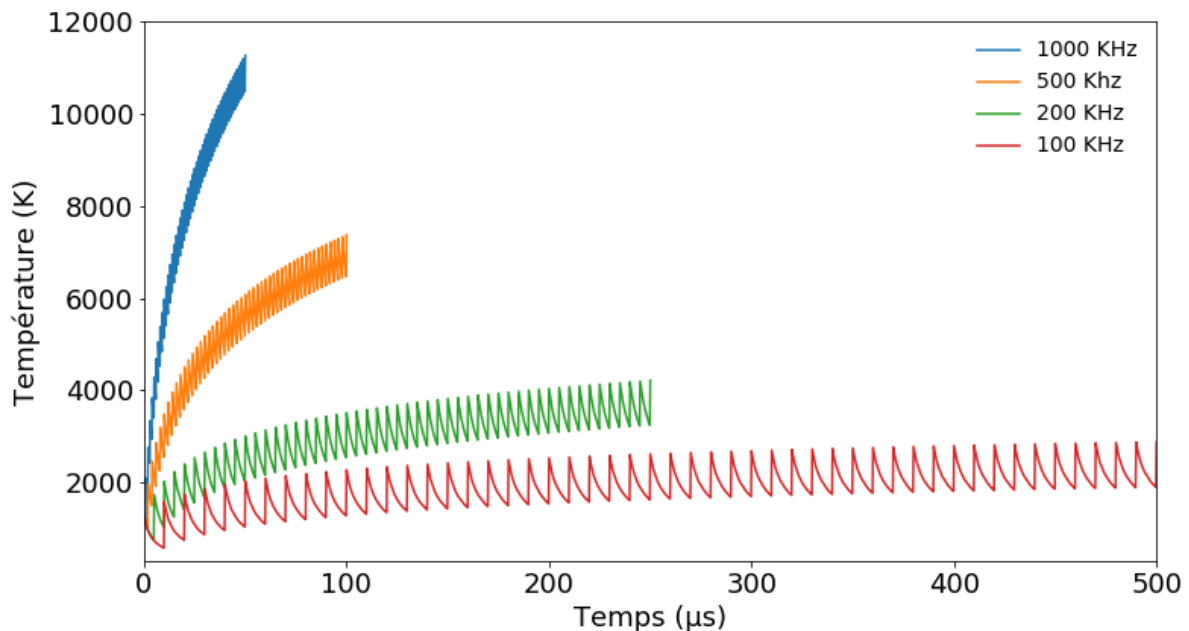


Figure 87. Calcul de la température au centre d'un faisceau pour 50 impulsions de  $10\ \mu\text{m}$  de diamètre à  $1/e^2$  et une densité d'énergie crête de  $1,8\ \text{kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$  pour des fréquences de répétition de : 100 ; 200 ; 500 et 1000 kHz.

Pour résumer, lorsque la fréquence de répétition augmente, la chaleur a de moins en moins de temps pour diffuser entre deux impulsions successives. La conséquence est un effet d'accumulation thermique au centre du faisceau. Il est à noter que les fréquences de répétition à partir desquelles une accumulation thermique est présente peut varier avec la surface du faisceau mais aussi avec la densité d'énergie déposée par l'impulsion. En effet, à une fréquence de répétition fixe, plus la densité d'énergie sera importante et plus la température sera élevée. Ainsi, entre deux tirs consécutifs, la chaleur diffuse mais restera tout de même plus élevée comparée à un dépôt d'énergie moins important.

### Influence du nombre de sous-faisceaux sur l'évolution de la température et effets de coopération

La Figure 88(a) représente la cartographie 2D de la température à l'instant du dépôt d'énergie pour 4 faisceaux de  $10\ \mu\text{m}$  de diamètre à  $1/e^2$  avec une densité d'énergie crête déposée de  $1,8\ \text{kJ}\cdot\text{cm}^{-3}$  irradiant simultanément le matériau. La distance entre chaque sous-faisceau est de  $20\ \mu\text{m}$ . La Figure 88(b) représente la température en fonction du temps à différentes positions de la Figure 88(a) pour une fréquence de répétition de  $100\ \text{kHz}$ . Au centre d'un faisceau, à un rayon de  $14\ \mu\text{m}$  vers l'intérieur des sous-faisceaux, puis à  $14$  ;  $28$  et  $42\ \mu\text{m}$  à l'extérieur des sous-faisceaux. Les comportements de la température observés dans le Figure 86(b) au centre du faisceau et lorsque la distance augmente sont retrouvés. Il est à noter que pour une distance de  $14\ \mu\text{m}$  (point équidistant aux 4 faisceaux) et  $14\ \mu\text{m}$  à l'extérieur des faisceaux, le comportement diffère. En effet, à  $14\ \mu\text{m}$  au centre des faisceaux, la température est plus importante qu'à l'extérieur. L'espace contenu entre tous les sous-faisceaux subit davantage la hausse de température dû à un effet coopératif entre les sous-faisceaux. Le point au centre de la matrice des 4 sous-faisceaux (soit  $14\ \mu\text{m}$ ) est l'optimum de la coopération, puisque l'augmentation de température provient de la diffusion de la chaleur équidistants de chacun des sous-faisceaux.

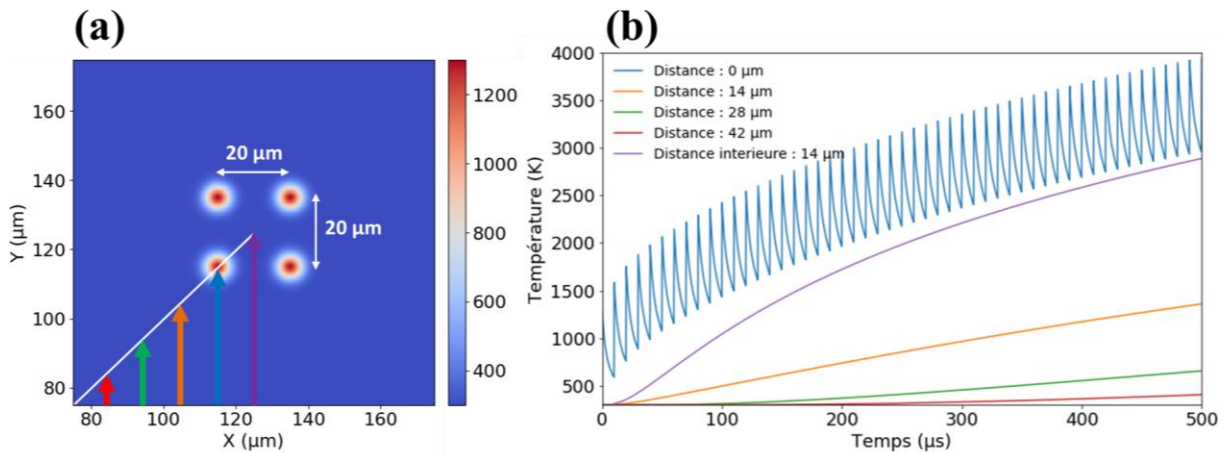


Figure 88. Calcul de la température en 5 positions pour une matrice  $2 \times 2$  de sous-faisceaux irradiant de façon synchrone le matériau avec une distance de  $20\ \mu\text{m}$  entre chaque sous-faisceau. La fréquence de répétition est de  $100\ \text{kHz}$  et le diamètre des sous-faisceaux à  $1/e^2$  est de  $10\ \mu\text{m}$  avec une densité d'énergie crête déposée de  $1,8\ \text{kJ}\cdot\text{cm}^{-3}$ .

### 3.2.2. Résultats thermo-élastiques.

Dans ce qui suit, des résultats issus du code thermo-élastique sont présentés. Les paramètres de simulation utilisés sont ceux décrits dans le Tableau 14 de la section précédente. Les contraintes générées par un faisceau de faible densité d'énergie sont présentées dans un premier temps. Puis est présenté l'évolution des contraintes dans le temps pour un faisceau cadencé à **1 MHz**. Les contraintes induites par l'irradiation simultanée de deux faisceaux pour une distance variable sont étudiées. Pour finir, les contraintes induites par l'irradiation d'une matrice de faisceau  $4 \times 4$  sont rapportées. Il est à noter que des fréquences de répétition laser inférieure à **1 MHz** n'ont pas été explorées dû au temps de simulation qui peut atteindre plusieurs semaines et dues aux capacités mémoire de la machine utilisée pour ces travaux. Il faut noter que dans l'étude de plusieurs sous-faisceaux irradiant simultanément le matériau, un couplage entre les différentes ondes acoustiques générées par chaque faisceau individuel pourrait sous-évaluer l'impact de ces ondes mécaniques sur la tenue mécanique du matériau. La cartographie des contraintes évaluées par simulations numériques calculées avec le modèle statique pourrait ainsi évoluer.

Il est considéré dans ce qui suit, l'instant noté  $t = 0 \text{ s}$  le temps à partir duquel la température de la matrice a atteint sa température maximale suite à la thermalisation de la température ionique et électronique après l'irradiation laser. Aussi, il est notée la limite de rupture (LR) définit pour chacune des contraintes comme la limite de résistance moyenne dans le Tableau 14.

Le Tableau 15 résume la signification des termes mathématiques calculé qui sont utilisés lors de la présentation des résultats. Souvent, uniquement la contrainte de cisaillement  $\tau_{xy}$  est présentée, car c'est une grandeur d'intérêt qui donne lieu rapidement à la rupture du matériau.

Tableau 15. Signification des composantes du tenseur principal.

Notation	Signification
$\sigma_I$	Contrainte maximale en traction
$\sigma_{II} < 0$	Contrainte maximale en compression
$\tau_{xy}$	Contrainte maximale de cisaillement

#### Contraintes avec 1 faisceau

Dans la Figure 89 sont représentées les contraintes maximales en 2D de traction (en (a)), de compression (en (b), lorsque  $\sigma_{II} < 0$ ) et le cisaillement (en (c)), pour un faisceau gaussien de  $20 \mu\text{m}$  à  $1/e^2$  à l'instant du dépôt d'énergie ( $t = 0 \text{ s}$ ). La densité d'énergie crête déposée est de  $3,3 \text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$ . Sur la Figure 89(d) est représentée une coupe selon l'axe x pour les contraintes de traction, compression et de cisaillement ( $\sigma_I, \sigma_{II}, \tau_{xy}$ ) centré sur le dépôt d'énergie. L'axe de la coupe peut être choisi arbitrairement sur le centre du faisceau puisque le dépôt d'énergie est invariant par rotation (gaussienne). Dans la zone du dépôt d'énergie, la température est très importante comme vu précédemment. Avec l'augmentation de la température, le matériau se dilate et la matière est étirée radialement vers l'extérieur du dépôt d'énergie et tangentiellment à l'étirement radial puisque ( $\sigma_{II} > 0$ ). Cette zone est marquée par une traction pure définie par la zone rouge sur la coupe selon l'axe x (Figure 89). La zone de traction pure correspond à peu près à la surface sur laquelle l'énergie a été déposée par le laser. En dehors du dépôt d'énergie laser et lorsque la chaleur n'a pas encore diffusé (c'est le cas dans cet exemple, puisque le temps est pris à l'instant du dépôt d'énergie) la matière est froide. La matière froide, va s'opposer à la dilatation de la matière chaude, qui elle est dilatée et une

zone de compression apparaît ( $\sigma_{II} < 0$ ). Comme la matière est poussée radialement et comprimée ou tirée, suivant des intensités et directions différentes, des contraintes de cisaillement apparaissent ( $\tau_{xy} > 0$ ). La traction est maximale au centre du faisceau si la température ne dépasse pas la température de transition vitreuse (c'est le cas dans cet exemple), puis elle diminue progressivement. En dehors de la surface irradiée, le matériau est toujours soumis à de la traction, mais le matériau est aussi soumis à de la compression ( $\sigma_{II} < 0$ ) menant à un fort cisaillement ( $\tau_{xy}$ ) sous une forme annulaire. Avec la distance, la traction, compression et le cisaillement sont de moins en moins fort et tendent vers zéro.

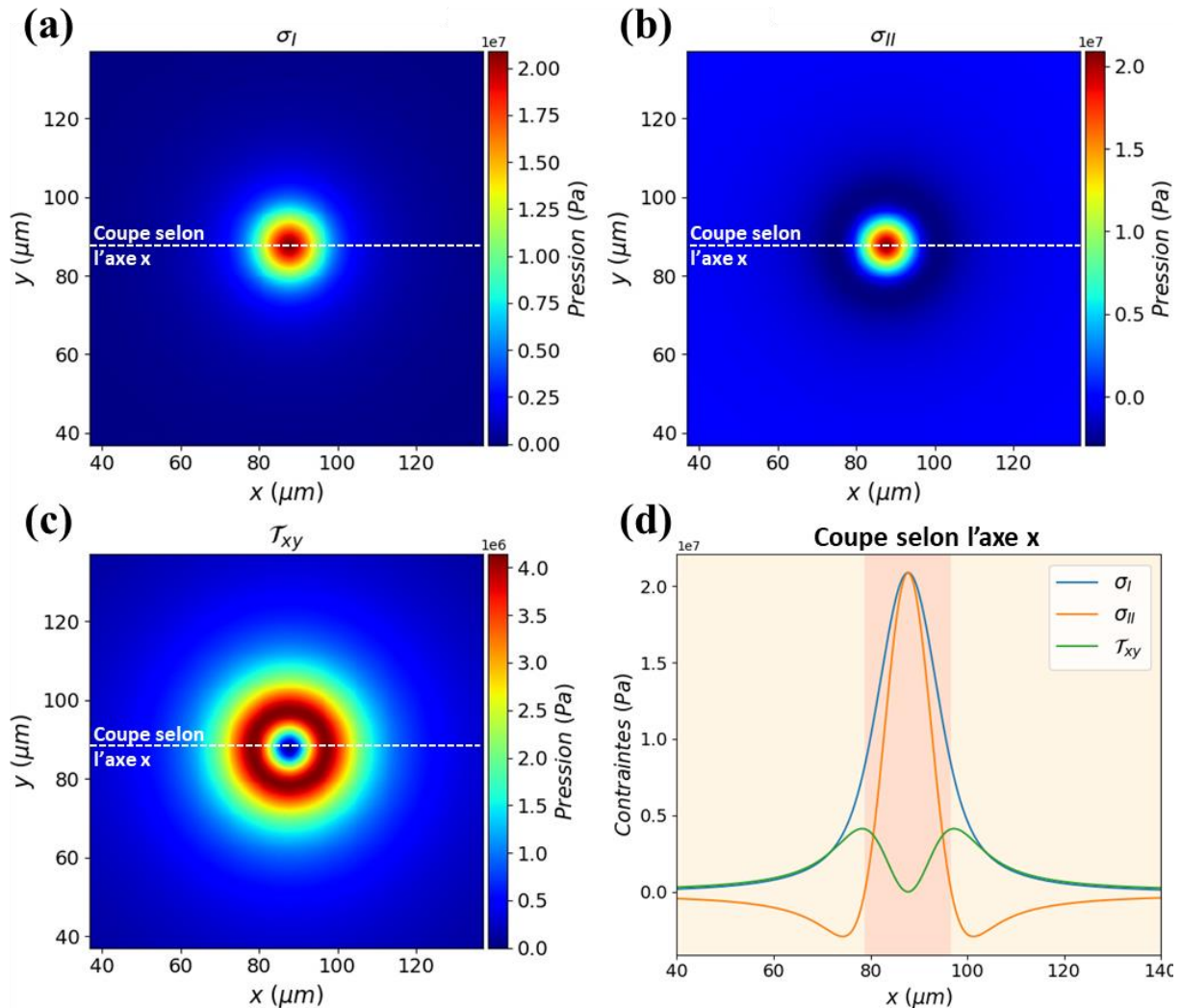


Figure 89. Simulation numérique des contraintes en 2D de traction en (a) compression en (b) et du cisaillement en (c) pour une irradiation à l'instant du dépôt d'énergie ( $t = 0$  s) et une coupe selon l'axe  $x$  centré sur le faisceau en (d). La densité d'énergie crête déposée est de  $3,3 \text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$  pour un faisceau gaussien de  $20 \mu\text{m}$  à  $1/e^2$ .

### Évolution des contraintes dans le temps

Sur la Figure 90(a)-(b) est tracée respectivement l'évolution des contraintes de cisaillement et l'évolution de la température selon une coupe sur l'axe  $x$  (analogue à la Figure 89) mais en fonction



du temps pour une irradiation laser successive toute les  $1 \mu\text{s}$ , correspondant à une fréquence de répétition laser de  $1 \text{ MHz}$ . Le terme source utilisé est le dépôt d'énergie d'un faisceau gaussien de  $20 \mu\text{m}$  de diamètre à  $1/e^2$  pour une densité d'énergie déposée crête de  $10 \text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$ .  $40$  tirs laser en utilisant le même terme source sont simulés. Les maximums de contraintes en traction, compression et de cisaillement sont aussi représentés en fonction du temps sur la Figure 90(c). Lors de la première irradiation, les contraintes sont un peu plus importantes que celles observées dans la Figure 89, car la densité d'énergie déposée est plus élevée. Aussi la densité d'énergie déposée est suffisante pour fondre/ablater le matériau uniquement au centre du dépôt d'énergie et les contraintes relaxent.

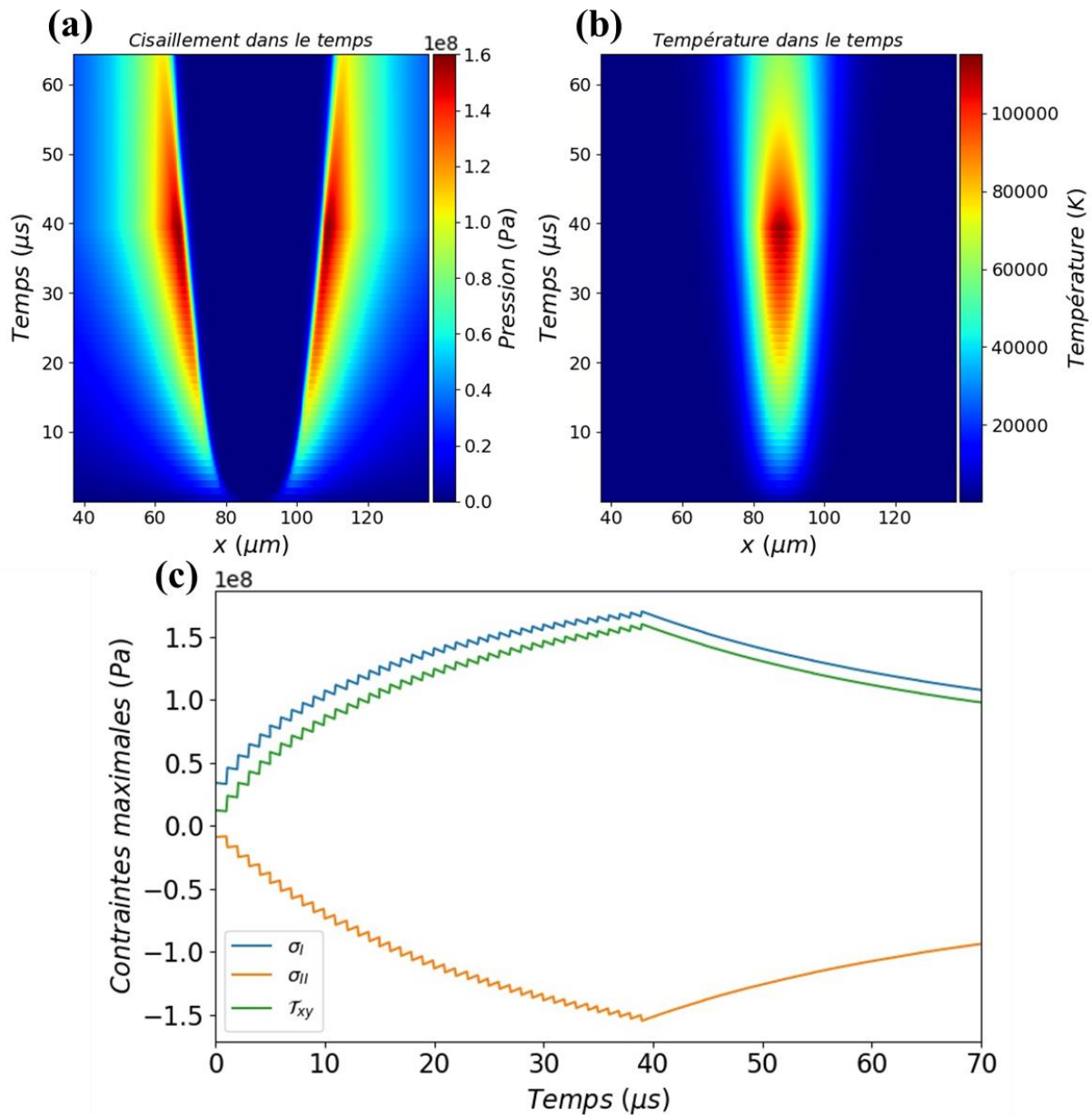


Figure 90. Évolution dans le temps des contraintes de cisaillement en (a) et de la température selon une coupe sur l'axe  $x$  en (b) et évolution des contraintes maximales de traction, compression et de cisaillement dans le temps en (c). Au total,  $40$  tirs laser à  $1 \text{ MHz}$  sont simulés. Le terme source utilisé est le dépôt d'énergie d'un faisceau gaussien de  $20 \mu\text{m}$  de diamètre à  $1/e^2$  pour une densité d'énergie déposée crête de  $10 \text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$ .

Lorsqu'une nouvelle impulsion irradie le matériau, la température de la matrice réaugmente significativement. L'augmentation de la température réintensifie les gradients de température et les contraintes. À la suite d'une succession de cycles d'irradiation et dans un régime accumulatif (c'est le cas, car la fréquence de répétition est de **1 MHz**) les contraintes ne cessent d'augmenter jusqu'à l'arrêt des tirs laser. Lorsque l'irradiation cesse (après **40 tirs**) et avec le temps, la chaleur continue de diffuser dans l'espace. La diffusion permet de lisser les gradients thermiques tout en diminuant la température maximale. Ainsi, les contraintes sont moins importantes en amplitude, mais la surface affectée par les contraintes augmente. Tant que la limite d'élasticité n'est pas franchie, ces contraintes relaxent avec le temps de façon analogue à la diffusion de la chaleur. Il est à noter que les gradients de température générés par une impulsion et 40 tirs laser successifs ne sont pas assez forts pour induire des contraintes proches des valeurs-limites admissibles par le matériau dans cet exemple.

### Contraintes induites par l'irradiation simultanée de 2 sous-faisceaux avec des distances variables

La Figure 91, la Figure 92 et la Figure 93 représentent une cartographie des contraintes de cisaillement en 2D et une cartographie des zones affectées thermiquement (ZAT) avec les zones où le seuil moyen de rupture est dépassé (LR) à l'instant du dépôt d'énergie ( $t = 0$  s) pour deux faisceaux irradiant simultanément le matériau. La distance inter-faisceau est respectivement de **0, 33 et 80  $\mu\text{m}$** . La densité d'énergie déposée pour chaque faisceau correspond à celle d'un faisceau gaussien de **20  $\mu\text{m}$**  de diamètre à  $1/e^2$  et d'une densité d'énergie crête absorbée de **100  $\text{kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$** . Sur la Figure 91, lorsque les deux sous-faisceaux sont spatialement superposés, la densité d'énergie déposée est très importante et les gradients de température sont très forts, les contraintes associées sont importantes et dépassent dans les zones rouge la limite de cisaillement admissible par le matériau. Lorsque la limite par le matériau est dépassée, un régime plastique ou des fissurations peuvent apparaître. La zone plastique étant très faible pour les verres (voir Section 2.2 du Chapitre 1), la probabilité pour que le verre fissure est plus grande. Les zones bleues correspondent aux zones affectées thermiquement où la température dépasse la température ébullition du matériau.

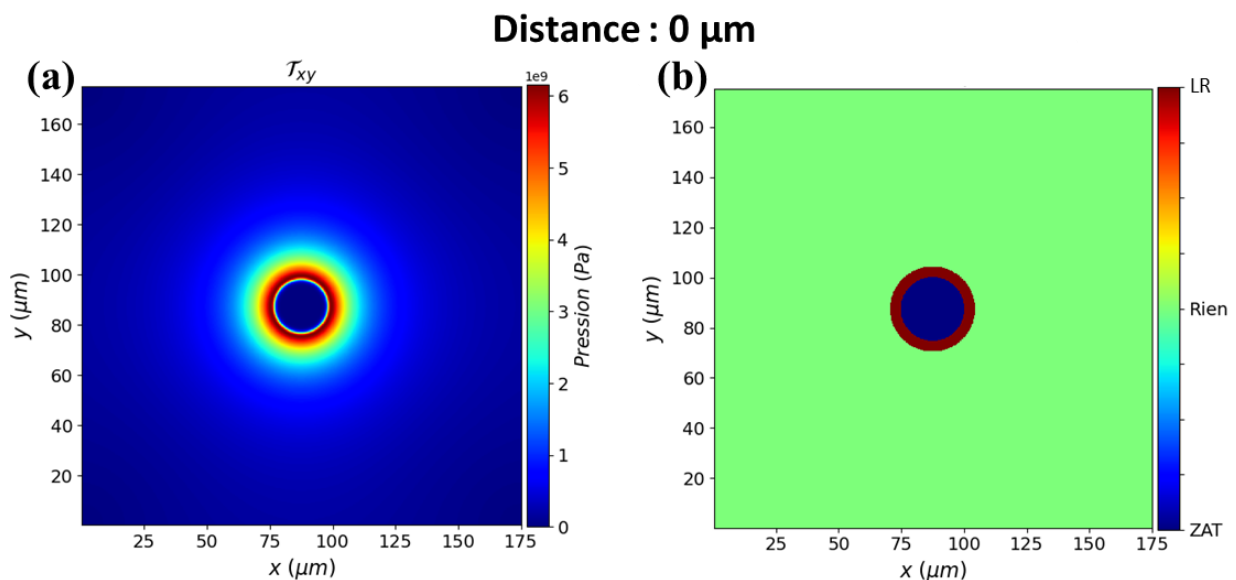


Figure 91. Cartographie des contraintes de cisaillements en 2D en (a) et une cartographie des zones affectées thermique (ZAT) (en bleu) avec les zones où le seuil moyen en rupture (LR)

est dépassé (en rouge) en (b), à l'instant du dépôt d'énergie ( $t = 0$  s) pour deux sous-faisceaux irradiant simultanément le matériau. La distance inter-faisceau est de  $0 \mu\text{m}$  (superposé). La densité d'énergie déposée pour chaque sous-faisceau correspond à celle d'un faisceau gaussien de  $20 \mu\text{m}$  de diamètre à  $1/e^2$  et d'une densité d'énergie crête absorbée de  $100 \text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$ .

Lorsque la distance interfaisceau est de  $33 \mu\text{m}$  (Figure 92), les gradients de température sont moins importants autour des sous-faisceaux et le seuil moyen de rupture en cisaillement n'est plus atteint en périphérie. Cependant, un effet de coopération est observable puisque les contraintes sont suffisamment importantes pour dépasser le en cisaillement entre les deux sous-faisceaux.

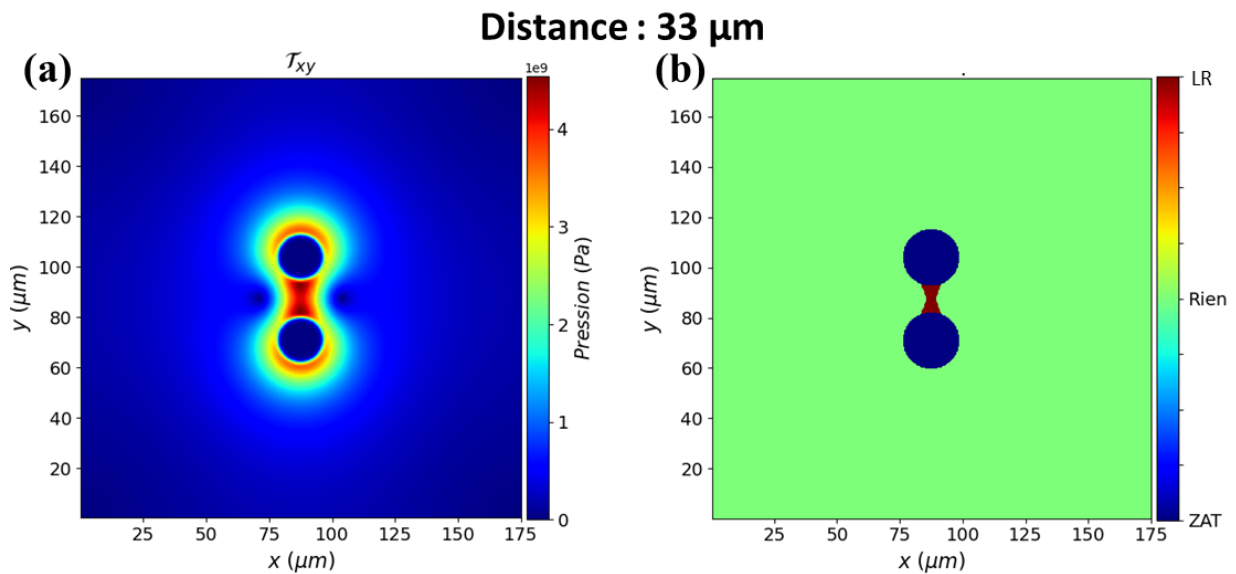


Figure 92. Cartographie des contraintes de cisaillement en 2D en (a) et une cartographie des zones affectées thermique (en bleu) avec les zones où le seuil moyen de rupture est dépassé (en rouge) en (b), à l'instant du dépôt d'énergie ( $t = 0$  s) pour deux sous-faisceaux irradiant simultanément le matériau. La distance inter-faisceau (de centre à centre) est de  $33 \mu\text{m}$ . La densité d'énergie déposée pour chaque sous-faisceau correspond à celle d'un faisceau gaussien de  $20 \mu\text{m}$  de diamètre à  $1/e^2$  et d'une densité d'énergie absorbée crête de  $100 \text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$ .

Pour une distance inter-faisceau de  $80 \mu\text{m}$  (Figure 93), l'effet de coopération observable en Figure 92 pour une distance inter-faisceau de  $33 \mu\text{m}$  sur les contraintes de cisaillement entre les deux faisceaux a disparu. La distance est devenue trop importante pour que les contraintes générées par chaque sous-faisceau puissent coopérer efficacement et être visibles. De plus, et comme précédemment, le seuil moyen en rupture en périphérie du dépôt d'énergie n'est plus atteint, car les gradients de température ne permettent pas de générer des contraintes suffisamment importantes en dehors de la zone affectée thermiquement (fusion/ ablation).



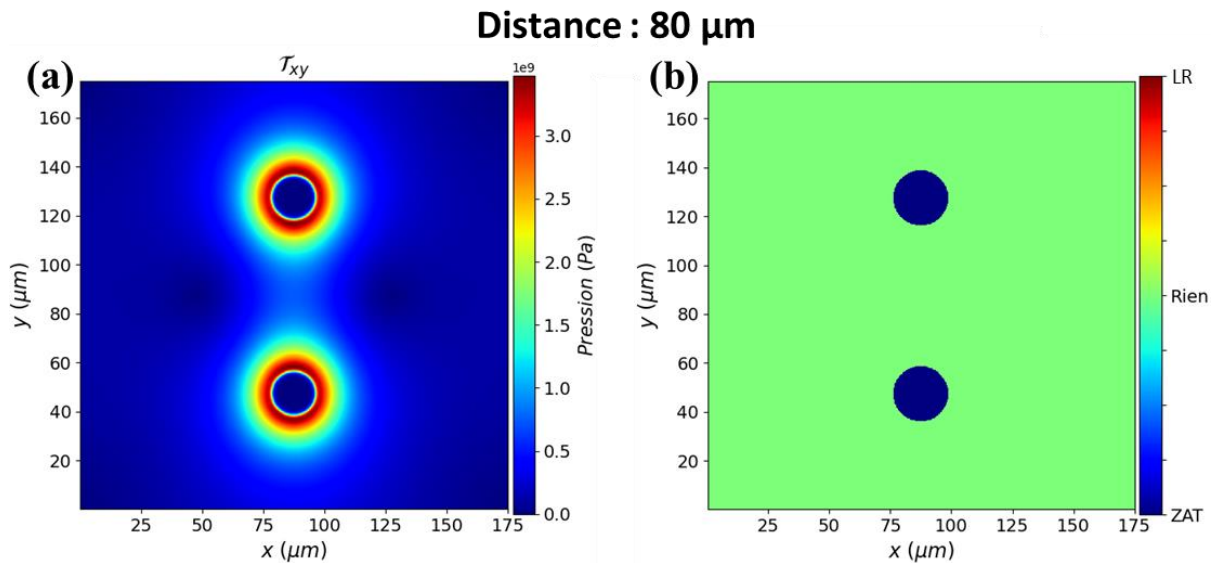


Figure 93. Cartographie des contraintes de cisaillement en 2D en (a) et une cartographie des zones affectées thermique (en bleu) avec les zones où le seuil moyen de rupture est dépassé (en rouge) en (b), à l'instant du dépôt d'énergie ( $t = 0$  s) pour deux faisceaux irradiant simultanément le matériau. La distance inter faisceau (de centre à centre) est de  $80 \mu\text{m}$ . La densité d'énergie déposée pour chaque sous-faisceau correspond à celle d'un faisceau gaussien de  $20 \mu\text{m}$  de diamètre à  $1/e^2$  et d'une densité d'énergie absorbée crête de  $100 \text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$ .

Sur la Figure 94 sont tracées les contraintes maximales de traction, compression et de cisaillement en fonction de la distance inter-faisceau variant de  $0$  à  $80 \mu\text{m}$ . Les contraintes maximales obtenues correspondent pour chaque distance à l'instant du dépôt, c'est-à-dire ( $t = 0$  s). La densité d'énergie déposée pour chaque faisceau est la même que précédemment (correspond à celle d'un faisceau gaussien de  $20 \mu\text{m}$  de diamètre à  $1/e^2$  et d'une densité d'énergie absorbée crête de  $100 \text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$ ). Sur la Figure 94 le maximum de contrainte atteint est localisé en deux endroits : lorsque la distance inter-faisceau est de  $0 \mu\text{m}$  (les sous-faisceaux sont parfaitement superposés) et pour une distance de  $23 \mu\text{m}$ . Pour des distances comprises entre  $0$  et  $20 \mu\text{m}$ , les contraintes maximales sont moins importantes, car le gradient de température devient plus faible. Cependant, lorsque la distance augmente davantage entre  $20$  et  $40 \mu\text{m}$ , un effet coopératif est observé, car les contraintes maximales réaugmentent. L'effet de coopération est obtenu dans une zone bien spécifique, puisque les contraintes générées par chacun des faisceaux doivent œuvrer dans le même sens (s'additionner positivement) pour pouvoir s'amplifier. Pour des distances supérieures à  $60 \mu\text{m}$  les contraintes maximales n'évoluent plus avec la distance et tendent vers des valeurs que produirait un faisceau unique.

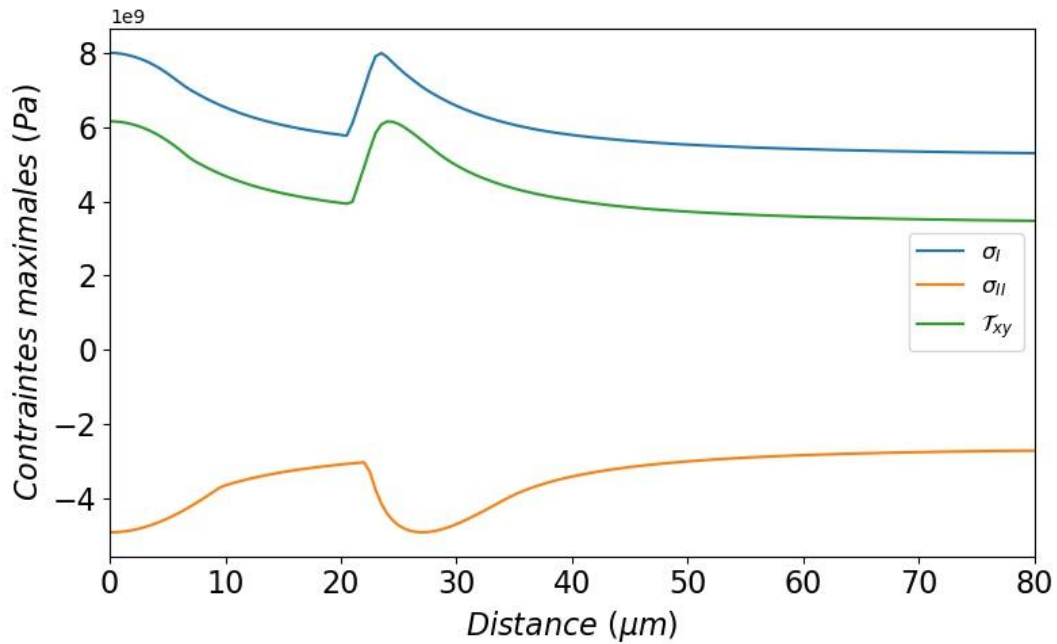


Figure 94. Contraintes maximales de traction, compression et de cisaillement en fonction de la distance inter faisceau (distance séparant de centre à centre les deux faisceaux) variant de 0 à 80  $\mu$ . Les contraintes maximales obtenues correspondant pour chaque distance à l'instant du dépôt, c'est-à-dire ( $t = 0$  s). La densité d'énergie déposée pour chaque faisceau correspond à celle d'un faisceau gaussien de 20  $\mu$ m de diamètre à  $1/e^2$  et d'une densité d'énergie crête absorbée de  $100 \text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$ .

La Figure 95(a) représente les contraintes de cisaillement 2D après 1 tir laser à 1 MHz (soit  $t = 0 \mu$ s) et après 15 tirs laser en Figure 95(b) (soit  $t = 15 \mu$ s) pour une matrice  $4 \times 4$  dont l'espacement entre les sous-faisceaux de 25  $\mu$ m (de centre à centre). La densité d'énergie déposée pour chaque sous-faisceau correspond à celle d'un faisceau gaussien de 10  $\mu$ m de diamètre à  $1/e^2$  et d'une densité d'énergie crête absorbée de  $30 \text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$ . Initialement et après quelques tirs laser, les contraintes de cisaillement sont analogues à celles d'un faisceau unique et elles décrivent une répartition annulaire centrée sur chacun des faisceaux (Figure 89). Avec le temps, la température diffuse, et les zones affectées par les contraintes sont de plus en plus importantes, si bien que celle-ci sont maximales par effet de coopération sur un quadrillage centré sur les sous-faisceaux. Lorsque les contraintes dépassent les limites admissibles par le matériau, des contraintes résiduelles peuvent être présentes ou de la fissuration peut apparaître.

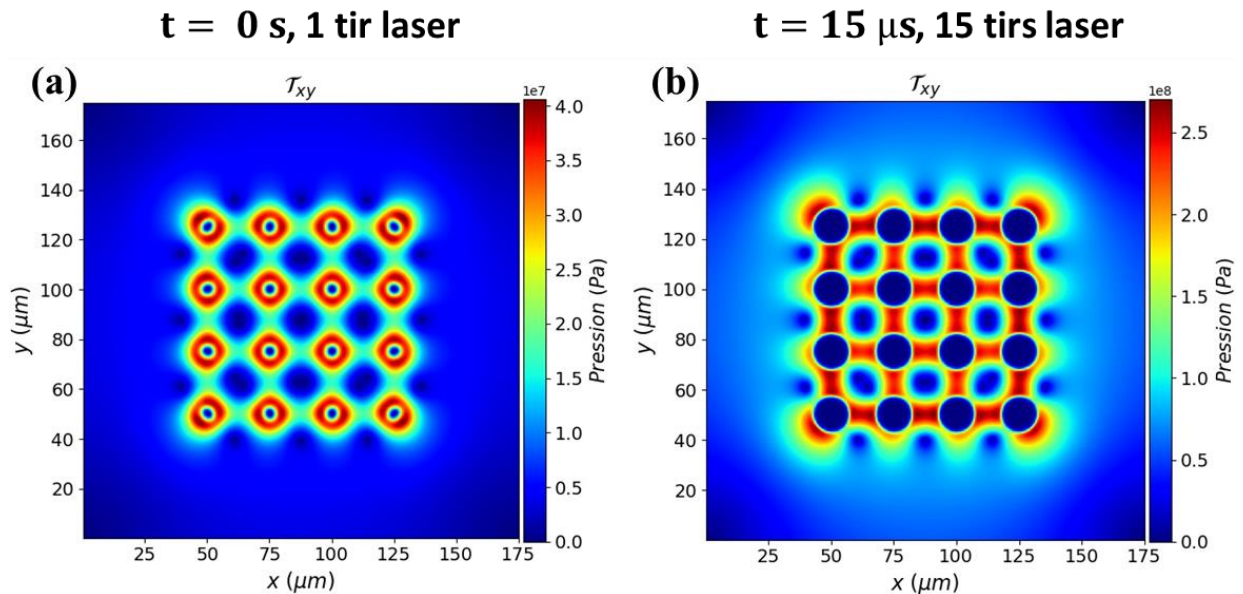


Figure 95. Cartographie 2D des contraintes de cisaillement après 1 tir laser en (a) et après 15 tirs laser à 1 MHz en (b) pour une matrice  $4 \times 4$  dont l'espacement entre les faisceaux est de  $25 \mu\text{m}$ . La densité d'énergie déposée pour chaque sous-faisceau correspond à celle d'un faisceau gaussien de  $10 \mu\text{m}$  de diamètre à  $1/e^2$  et d'une densité d'énergie crête absorbée de  $30 \text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$ .

Différents exemples spécifiques ont été choisis et montrés au niveau de la thermique et des contraintes. Bien que le modèle thermo-élastique ne soit pas complètement quantitatif, il permet d'en extraire des tendances en connaissant ses limites et il permet ainsi de mettre en avant les paramètres d'influences tels que : le diamètre du faisceau, la fréquence de répétition, la distance inter-faisceau et la densité d'énergie crête déposée sur l'évolution thermo-élastique du matériau induit par irradiation laser.

#### 4. Discussion

Les résultats expérimentaux sont discutés dans cette section en comparant les phénomènes observés expérimentalement et les simulations numériques thermo-élastiques. Trois niveaux d'endommagement autour des faisceaux (trous) ont été identifiés: (i) fissuration, (ii) présence de contraintes résiduelles sans fissuration et zone fondue, (iii) endommagement inter-faisceaux sous-surfacique. Dans un premier temps sont analysés les phénomènes de fissuration observables dans l'expérience, puis sont discutés les contraintes résiduelles et les zones affectées thermiquement. Pour finir, sont analysés les cas d'endommagement sous-surfacique en segment.

À très forte fluence (plusieurs fois le seuil d'ablation), la densité d'énergie déposée par chaque impulsion est très élevée et elle peut atteindre plusieurs dizaines à plusieurs centaines de kilojoules par centimètre cube [177]. À densité d'énergie absorbée égale, lorsque la fréquence de répétition augmente, la chaleur induite a moins le temps de diffuser entre deux impulsions successives (Figure 87) et les gradients thermiques sont de plus en plus forts. Les limites élastiques sont donc atteintes plus rapidement à  $200 \text{ kHz}$  avec moins d'impulsions (Figure 78) comparé à une fréquence de répétition

de 50 kHz (Figure 77) où les mêmes conditions de fissuration sont retrouvées (avec 20 fois plus d'impulsions laser). Les simulations réalisées sont en bon accord avec ce qui est observé expérimentalement. En effet, la zone de contrainte entre deux sous-faisceaux voisins se transforme en fissure quand les gradients de températures deviennent trop importants, car soit la fluence trop élevée (ou densité d'énergie absorbée importante dans la simulation), soit la fréquence de répétition est trop importante, ce qui mène à de l'accumulation thermique augmentant considérablement les gradients de température, mais sans que la température n'excède la température de transition qui annihile les déformations et les contraintes.

Les simulations thermo-élastiques réalisées avec deux sous-impulsions espacées selon une distance variable entre 0 et 80  $\mu\text{m}$  montrent une distance à partir de laquelle les faisceaux coopèrent. Cette coopération mène à une amplification des contraintes si bien qu'elles peuvent dépasser les limites admissibles par le matériau (Figure 94) et peuvent mener à de la fissuration sur l'axe passant par les deux faisceaux. Il est très important de noter qu'il n'a pas été simulé ce que produiraient 50 impulsions à 200 kHz (pour des questions de puissance et de temps de calcul). De plus, il faudrait développer un modèle pouvant calculer la densité d'énergie déposée à très forte fluence. Néanmoins, sur la base des simulations effectuées, il est possible d'extrapoler raisonnablement ce qui se passerait. Avec l'accumulation thermique, les gradients de températures et les contraintes générées augmentent, puis avec la diffusion thermique (Figure 90) la zone affectée par les contraintes s'étend. En considérant qu'un certain nombre d'impulsions mènent à des gradients de températures équivalents à ce que produirait une impulsion unique intense, les tendances sur la réponse élastique du matériau devraient être similaires. Sur la Figure 96(a) est représentée la valeur des pixels pour une coupe selon l'axe x de la Figure 79 pour une distance inter-faisceau (de centre à centre) de 60  $\mu\text{m}$  pour deux sous-faisceaux arrivant simultanément à une fréquence de répétition de 200 kHz avec 50 impulsions.

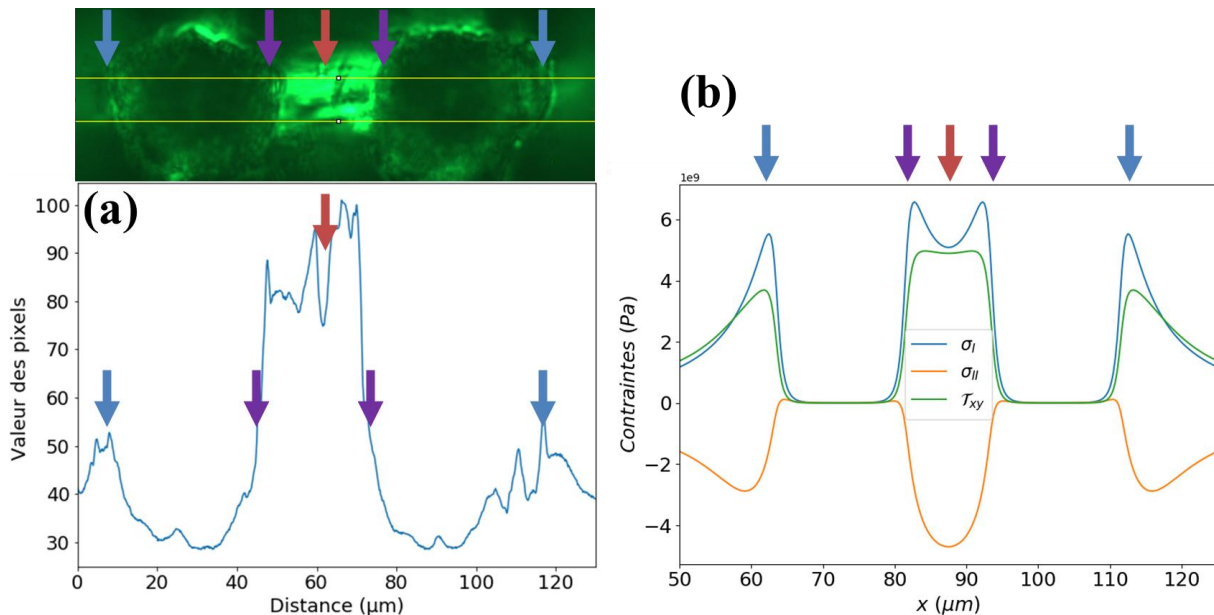


Figure 96. En (a) est représenté la valeur des pixels pour une coupe selon l'axe x de la Figure 79 pour une distance inter-faisceau de 60  $\mu\text{m}$  pour deux sous-faisceaux arrivant simultanément à une fréquence de répétition de 200 kHz avec 50 impulsions. En (b) est tracé le calcul des contraintes théoriques pour deux sous-faisceaux arrivant simultanément et espacés de 30  $\mu\text{m}$  pour une densité d'énergie crête absorbée de  $100 \text{ kJ} \cdot \text{cm}^{-3}$ . Les flèches illustrent des zones similaires entre l'expérience et la simulation.

En Figure 96(b) est représenté le calcul des contraintes théoriques pour deux faisceaux arrivant simultanément et espacés de  $30\ \mu\text{m}$  pour une densité d'énergie crête absorbée de  $100\ \text{kJ}\cdot\text{cm}^{-3}$  à l'instant du dépôt d'énergie en fonction de la distance. La distance inter-faisceau de  $30\ \mu\text{m}$  a été choisie, car l'allure des courbes des contraintes correspond au mieux à ce qui est observé expérimentalement sur la valeur des pixels au microscope à polarisation croisée. Les contraintes observables en microscopie à polarisation croisée via les valeurs des pixels peuvent être attribuées aux contraintes de traction, compression ou de cisaillement. Cependant, les contraintes de cisaillement dans les simulations sont les premières à dépasser les seuils, il est donc probable qu'elles soient responsables des contraintes résiduelles dans le matériau après irradiation et à de la fissuration. Les tendances observées dans l'expérience et les simulations sont donc en bon accord avec l'influence de la fréquence de répétition et l'influence de la distance pour qu'une coopération entre les sous-faisceaux ait lieu.

Le quadrillage de contraintes centré sur les faisceaux observables en Figure 80 et Figure 81, peut être associé aux contraintes résiduelles de cisaillements de façon analogue à celle produite par deux faisceaux mais sans fissuration. En effet, si les sous-faisceaux sont suffisamment proches et avec la diffusion thermique comme vu précédemment les faisceaux peuvent coopérer (Figure 95). Cependant, les fluences expérimentales étant bien moins importantes que dans le cas de l'irradiation simultanée avec deux faisceaux, le régime de fissuration n'est pas atteint. Néanmoins, les contraintes semblent atteindre un niveau suffisant pour générer des contraintes résiduelles dans le matériau et elles sont observables en microscopie à polarisation croisée. Bien que dans le cadre de cette thèse on n'ait pas calculé les contraintes dans des conditions similaires à l'expérience, le quadrillage de contraintes centré sur les sous-faisceaux est prédit par la simulation en Figure 95. La fréquence de répétition influence l'accumulation thermique et l'amplitude des contraintes, car les gradients seront plus forts avec une fréquence de répétition élevée. Quant à la diffusion thermique elle va propager ces contraintes qui formeront des contraintes résiduelles ou de la fissuration tant que leurs valeurs sont supérieures aux niveaux admissibles du matériau.

L'endommagement en segment observé en Figure 83, Figure 84 et Figure 85 ne sont prédits en aucun cas par la simulation numérique. L'endommagement en segment est toujours localisé sous la surface et elle est située à équidistance entre les faisceaux (la zone endommagée est l'ensemble des points situés à égale distance des sous-faisceaux). L'axe du dommage en segment est toujours perpendiculaire à l'axe qui relie deux sous-faisceaux. Le fait que la fréquence de répétition laser n'influe pas sur l'apparition de cette structure amène à penser que ce phénomène ne résulte pas de l'accumulation thermique dans le matériau. Cependant, il est nécessaire d'irradier le matériau avec un très grand nombre d'impulsions pour obtenir l'endommagement en segment (supérieur à 1000 impulsions). Les dommages en segment observés pourraient être une conséquence de la collision des chocs successifs (ou ondes acoustiques) générés par chacun des sous-faisceaux et à la génération d'ondes filles dans le matériau [88]. En effet, les sous-faisceaux irradiant en même temps le matériau, l'intensité de chacune des ondes mécaniques générées par chacun des sous-faisceaux s'additionne à l'endroit où elles se rencontrent, c'est-à-dire pour une distance à mi-chemin entre les sous-faisceaux. L'intensité cumulée de chacune des deux ondes ne semble pas suffisamment importante pour pouvoir dépasser les limites élastiques de celui-ci, puisqu'un grand nombre d'impulsions est nécessaire pour pouvoir observer le dommage en segment. En revanche, le dommage en segment peut être associé à une fatigue du matériau, qui finirait par s'endommager à l'intersection des deux ondes suite à une compression infinitésimale où la compression s'accumule. Cela expliquerait par ailleurs pourquoi le

dommage est visible en microscopie normale. Le modèle étant statique, il n'est pas possible de prédire cette observation par la simulation.

Lorsque les faisceaux sont trop proches, de l'accumulation thermique est visible (Figure 81), cette accumulation thermique peut lorsque la température de transition est atteinte, fondre et ablater le matériau sur toute son épaisseur. Ce phénomène est retrouvé par simulation en Figure 88 où la température au centre des quatre sous-faisceaux dépasse la température de transition vitreuse du matériau. Aussi, la fonte du matériau et les contraintes visibles autour de la zone fondue dans la Figure 81 sont reproduit par le modèle de façon analogue à la Figure 95 mais pour des densités d'énergies crêtes plus importantes et un plus grand nombre de tir laser. Ces résultats ne sont pas présentés par souci de concision. L'accumulation de chaleur au centre des structures est fonction de nombreux paramètres tels que : la taille du faisceau, la répartition des sous-faisceaux dans l'espace, de la fréquence de répétition laser, de l'énergie déposée par chaque sous-faisceau et des propriétés thermiques du matériau.

## 5. Synthèse

L'irradiation simultanée avec plusieurs faisceaux a été étudiée pour différentes matrices de sous-faisceaux : deux sous-faisceaux, triangle, rectangle, matrice carrée, ... Ces matrices de sous-faisceaux ont été générées en utilisant un SLM et en optimisant les masques de phase avec l'algorithme de Weighted Gerchberg-Saxton. Les études ont été menées en étudiant l'influence de différents paramètres laser comme : la fluence, le nombre d'impulsions, la taille des structures (en faisant varier la distance inter-faisceaux) et en étudiant l'influence de la fréquence de répétition laser. Les résultats ont été analysés en microscopie normale et en microscopie à polarisation croisée afin de révéler d'éventuelles contraintes résiduelles. Les contraintes résiduelles sont formées lorsque les contraintes de traction, compression ou de cisaillement dépassent les seuils élastiques admissibles par le matériau.

Lorsque la fluence laser est très importante ( $57,6 \text{ J/cm}^2$  dans l'expérience) des fissurations sont observées dans l'axe passant entre les sous-faisceaux lorsque la distance entre les sous-faisceaux est suffisamment faible pour qu'ils coopèrent. Sur les fissurations, les contraintes relaxent, mais autour de celles-ci les contraintes résiduelles sont toujours observables au microscope à polarisation croisée.

À des fluences plus faibles (quelques fois le seuil d'ablation en fluence), le niveau de contraintes atteint n'est pas assez important pour fissurer le matériau, la zone de fissuration peut être substituée par une zone de contrainte résiduelle entre deux sous-faisceaux ou en forme de quadrillage centré sur les sous-faisceaux. Les contraintes résiduelles sont préférentiellement localisées en surface du matériau, elles dépendent de la fluence, de la fréquence de répétition laser et de la distance inter-faisceau. Pour une matrice de sous-faisceaux, une fréquence de répétition laser, un nombre d'impulsions et une fluence de sous-faisceau fixée, lorsque la distance inter-faisceau diminue, de fortes zones affectées thermiquement apparaissent et peuvent fondre le matériau sur toute son épaisseur au point de l'ablater.

Toujours pour de faibles fluences (quelques fois le seuil d'ablation en fluence), mais avec un grand nombre d'impulsions ( $> 1000$ ) et indépendamment de la fréquence de répétition laser, des dommages sous-surfaciques en segment sont observables. Le segment est toujours localisé sous la surface et est situé à équidistance entre les faisceaux. L'axe du segment est toujours perpendiculaire à l'axe qui relie

de sous-faisceaux entre eux. Le segment peut être observé en microscopie normale ou avec un microscope à polarisation croisée. Les dommages sous-surfaciques en segment observés pourraient être une conséquence de la collision des chocs successifs (ou ondes acoustiques) générés par chacun des sous-faisceaux. Le fait que celui-ci apparaît uniquement avec un grand nombre d'impulsions peut être associé à une fatigue du matériau, qui finirait par s'endommager à l'intersection des deux ondes. Les contraintes résiduelles observées à faible fluence et les dommages sous-surfaciques en segment peuvent coexister et ces phénomènes sont plus ou moins intenses en fonction de paramètres laser (fréquence de répétition, nombre d'impulsions, fluence, distance inter-faisceaux).

Un modèle thermo-élastique a été développé afin de comprendre les différents phénomènes observés expérimentalement. Le modèle développé est un code 2D, il est statique puisqu'il ne rend pas compte de la dynamique des ondes mécaniques. Cependant, il est possible d'extrapoler raisonnablement les résultats des simulations en modélisant et connaissant l'influence de la fréquence de répétition laser et de l'énergie déposée sur les résultats thermo-élastique. Le modèle a permis de mettre en évidence les effets de coopération entre deux sous-faisceaux. De plus, il permet de prédire la structure en quadrillage observée pour une matrice de sous-faisceaux dans les expériences. Les dommages sous-surfaciques ne sont pas prédits par le modèle étant donné que celui-ci n'intègre pas la partie dynamique des ondes mécaniques et qu'il est 2D (il modélise uniquement la surface).

Finalement, les résultats expérimentaux et le modèle montrent que pour des sous-faisceaux de  $20\ \mu\text{m}$  de diamètre environ avec des fluences raisonnables correspondant à quelques fois le seuil en fluence d'ablation, un espacement inter-faisceau supérieur à  $60\ \mu\text{m}$ , et un nombre d'impulsions inférieures à  $1000$  qu'il n'y a pas d'effet néfaste : coopération entre faisceau, fissure, endommagement en segment, zone affectée thermiquement lors de l'irradiation simultanée d'une matrice de sous-faisceau. Les résultats montrent donc que la parallélisation du procédé laser pour percer de la silice fondue pour de faibles épaisseurs ( $< 100\ \mu\text{m}$ ) est parfaitement envisageable en respectant les conditions précédemment décrites.



## CONCLUSION GÉNÉRALE ET PERSPECTIVES

---

Ces travaux de thèse ont été menés pendant 3 ans au laboratoire CELIA et au centre technologique ALPhANOV. Ils comportent une partie expérimentale et une partie théorique avec le développement de modèles pour mieux comprendre les mécanismes physiques mis en jeu et interpréter les observations expérimentales. Le premier objectif était d'optimiser (en maximisant) le dépôt d'énergie laser afin d'augmenter les volumes ablatés et ainsi de réduire le temps de perçage laser dans la silice fondue. Le second objectif concerne l'étude de l'irradiation simultanée de plusieurs endroits dans la silice fondue pour la multiperforation laser afin d'identifier les limites de cette technique et d'en identifier les conséquences sur l'endommagement matière.

Dans le premier chapitre, les mécanismes d'interaction entre un rayonnement laser femtoseconde et un matériau diélectrique transparent ont été rappelés ainsi que la réponse macroscopique du matériau après irradiation. Différents modèles sont présentés pour rendre compte des différents processus impliqués dans la dynamique électronique. Ces processus sont l'ionisation (photoionisation et impact), le chauffage électronique, les collisions et la recombinaison électronique. Il a été vu que sous l'action du champ électromagnétique, le matériau se polarise. La polarisation du matériau et l'ionisation affecte les propriétés optiques du matériau définies par la fonction diélectrique qui peut être calculée au premier ordre en utilisant le modèle de Drude. La propagation du faisceau laser peut être modélisée en utilisant les équations de propagation (équations de Maxwell) couplées aux équations décrivant le milieu (fonction diélectrique). En fonction des paramètres laser et des conditions de focalisation, l'interaction produira un dépôt d'énergie par absorption non linéaire et linéaire localisée sur l'épaisseur de peau de la cible. Dans une seconde partie, le modèle à deux températures a été présenté pour modéliser le transfert d'énergie entre les électrons et les ions. Nous avons montré que pour des impulsions dont la durée est inférieure au temps caractéristique de thermalisation électron-ion, que l'équilibre thermique est atteint avant la diffusion thermique dans la matrice. De ce fait, le terme source du dépôt d'énergie laser sert de condition initiale pour la diffusion de la chaleur. L'élévation de température de la matrice peut être accompagnée de changement d'état et à des mouvements hydrodynamiques. La relaxation de la matière chauffée peut aussi entraîner une déformation de la matière froide et solide qui l'entoure. Des contraintes et déformations mécaniques, régies par les propriétés de la matière, apparaissent alors dans le matériau. Un modèle thermo-élastique a été présenté pour modéliser le comportement mécanique d'un solide parfait dans le régime élastique. Lorsque les contraintes admissibles par le matériau sont trop importantes, celles-ci peuvent donner lieu à de la fissuration ou à des contraintes résiduelles, signe d'une déformation plastique de la matière. Le critère de Mohr a été présenté, il permet de déterminer les zones de rupture en comparant les contraintes aux limites admissibles du matériau. Dans une troisième partie a été traité un état de l'art de l'influence des caractéristiques des impulsions sur l'ablation. En effet, comme vu lors de la première partie, les lois régissant la dynamique électronique dépendent du matériau mais aussi des caractéristiques de l'impulsion laser en termes d'énergie, de durée d'impulsion, de longueur d'onde, de polarisation, etc. Par conséquent, l'absorption de l'énergie laser, liée à l'efficacité de l'ablation laser, peut être améliorée en réglant les paramètres du laser, et/ou en effectuant une mise en forme spatiale et/ou temporelle du faisceau. Les résultats obtenus montrent une diminution du



seuil d'ablation en fluence lorsque la longueur d'onde ou la durée d'impulsion diminue. Lorsqu'une mise en forme temporelle est utilisée, les travaux publiés n'apportent pas de réponse franche sur le bénéfice ou non du procédé double impulsion pour l'ablation laser comparé à une impulsion unique. La réponse dépend du référentiel (simple ou double impulsion) et de l'observable. Ce premier chapitre a servi de support aux trois autres chapitres, travaux originaux de cette thèse, afin de comprendre et interpréter les résultats expérimentaux avec le développement de modèle pour calculer l'énergie laser absorbée et la réponse thermo-élastique du matériau.

Le Chapitre 2 s'est consacré à la présentation des résultats expérimentaux et de modélisation dans le cas d'une irradiation de deux sous-impulsions de même longueur d'onde dans la silice fondue avec une focalisation à la surface. L'influence de la polarisation et du délai sur le volume ablaté a été étudiée afin de trouver s'il existait une configuration où les électrons générés par la première impulsion pourraient coopérer et être chauffés plus efficacement par la deuxième impulsion, dans le but de maximiser le dépôt d'énergie et les volumes ablatés. Deux configurations ont été étudiées : la Polarisation Linéaire Croisée orthogonalement (PLC) et la Polarisation Circulaire Contre Rotative (PCCR). L'influence de la fluence totale et de l'état de polarisation a été étudiée pour les délais compris entre **0 - 5 ps** pour un ratio en fluence de **50:50**. À l'issue de ces tests, deux observables expérimentales ont été analysées : la transmission optique et le volume ablaté. Il a été montré que lorsque l'impulsion incidente est divisée en deux sous-impulsions, une diminution de l'intensité maximale, du taux de photoionisation et du dépôt d'énergie est observée. La tendance est une chute du volume ablaté pour les délais croissants. L'état de polarisation pendant l'irradiation laser est également déterminant sur les résultats de transmission et d'ablation. Si l'état de polarisation n'a pas d'influence sur le dépôt d'énergie ou le volume ablaté dans le cas d'une absorption à un photon (linéaire), il en est autrement dans le cas d'une absorption multi-photonique (non linéaire). En effet, une polarisation linéaire correspond à une section efficace d'absorption plus élevée, et par conséquent un dépôt d'énergie plus important, par rapport à une polarisation circulaire. Lorsqu'un délai est appliqué, l'état de polarisation varie dans le temps et elle peut alterner entre des polarisations linéaires, circulaire ou elliptique. L'état de polarisation peut être défini en connaissant l'amplitude et la phase des champs électriques. Dans la configuration PLC l'état de polarisation ne peut être défini avec précision en raison des incertitudes sur le délai nul (phase non connue entre **0** et  **$2\pi$** ). Le fait qu'il n'y ait pas d'asservissement de la ligne à retard n'influe pas significativement sur l'état de la polarisation, car les figures d'interférences obtenues montrent que les variations de phase engendrées par le bruit ambiant sont négligeables. En revanche dans la configuration PCCR la phase n'influe pas sur l'état de polarisation mais uniquement sur l'orientation, et pour des courts délais la polarisation moyenne tend vers une polarisation linéaire. Ainsi, il a pu être démontré que pour des délais inférieurs à **500 fs**, il existe des effets de coopération entre l'état de polarisation linéaire résultant et l'intensité cumulée croissante, ce qui conduit à une augmentation du volume ablaté. Ces travaux expérimentaux ont montré que l'efficacité de l'ablation résulte de la combinaison de deux paramètres, l'état de polarisation et l'intensité cumulée, laquelle dépend du délai entre les deux impulsions, et la polarisation dans une moindre mesure. Des expériences réalisées avec un rapport de fluence de **70:30** ont également été effectuées (non présentées dans ce manuscrit par souci de concision). Les résultats expérimentaux sont similaires, mais les effets sur la transmission optique et le volume ablaté sont moins prononcés et proches de ceux d'une expérience d'irradiation par laser à impulsion unique. Bien qu'aucune amélioration significative du taux d'ablation n'ait été observée lors de l'irradiation à double impulsion par rapport au cas de l'irradiation à impulsion unique, pour un rapport d'énergie de (**50:50** ou **70:30**), les résultats permettent de mieux comprendre l'interaction laser-matière conduisant à

l'ablation du matériau diélectrique comme l'influence de paramètres clés, tels que l'état de polarisation et le délai entre les impulsions, sur le comportement d'ablation. Finalement, les expériences et le modèle sont tous les deux en bon accord pour indiquer respectivement que le maximum de volume ablaté et la densité d'énergie absorbée est obtenu pour un délai nul ou en utilisant une impulsion unique de caractéristique et fluence équivalente et de polarisation linéaire. Dans l'étude qui vise à optimiser les débits matière, l'impulsion primaire délivrée par le laser est la plus efficace pour cette application visée qui consiste à maximiser les volumes ablatés par impulsion laser.

Dans le Chapitre 3 ont été présentés des résultats expérimentaux et des modélisations dans le cas d'une irradiation de deux sous-impulsions brèves de longueur d'onde différente focalisées en surface de la silice fondue. Le but de ces travaux était d'augmenter la densité d'énergie laser déposée et les volumes ablatés en utilisant une double impulsion aux caractéristiques différentes afin d'accroître la photoionisation avec une longueur d'onde plus courte. Puis d'augmenter efficacement le chauffage électronique avec une impulsion de longueur d'onde et de durée d'impulsion plus importante. L'ajout d'un délai approprié, c'est-à-dire pas trop court pour que les premiers électrons générés par photoionisation soient chauffés efficacement et pas trop long pour qu'ils n'aient pas totalement recombinaison, devait permettre de tirer bénéfice des avantages de chacune des impulsions. Les études ont été réalisées dans la configuration **470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm)** puis en configuration **470 fs (515 nm) – 10 ps (1030 nm)**. L'influence des paramètres du délai, de la durée d'impulsion à **1030 nm** et aussi le ratio de densité d'énergie (fluence) entre les deux sous-impulsions a été étudiée. Les résultats ont été discutés sur la base des transmissions optiques (**515 nm** et **1030 nm**), des volumes ablatés et de la profondeur d'ablation. Une faible portion des résultats obtenus a été montrée par souci de concision, mais les résultats présentés sont représentatifs des tendances générales observées sur l'ensemble des paramètres variés. Un optimum de délai permettant de maximiser les volumes ablatés entre les deux sous-impulsions a été déterminé autour de **1 ps** et entre **4** et **10 ps**, respectivement pour la configuration **470 fs (515 nm) – 1 ps (1030 nm)** puis en configuration **470 fs (515 nm) – 10 ps (1030 nm)**. Quelle que soit la configuration, le délai ou la répartition en fluence entre les deux sous-impulsions, le volume ablaté reste inférieur à celui produit avec une impulsion unique de **515 nm**. Le procédé utilisé en utilisant une double impulsion bi-chromatique ne permet pas d'accroître ni le dépôt d'énergie ni le volume ablaté par rapport à une impulsion unique de **470 fs** à **515 nm**. Les tendances expérimentales sur les volumes ablatés (dissymétrie des courbes, optimum) ont été reproduites en calculant le dépôt d'énergie laser. Aussi, il a été montré en jouant sur les paramètres du modèle, plus précisément sur la section efficace de chauffage, qu'une loi d'échelle pour un exposant de deux est en meilleur accord avec l'expérience et explique pourquoi à basse fluence le procédé à double impulsion n'améliore pas la densité d'énergie laser déposée. Finalement, une double impulsion bi-chromatique ne permet pas d'accroître l'énergie laser déposée et l'ablation. En effet, l'impulsion verte conduit à une meilleure photoionisation due à un ordre multiphotonique plus faible. D'autre part, l'impulsion verte utilisée (**~500 fs**) semble suffisamment longue pour chauffer efficacement les électrons de conduction malgré la loi d'échelle en longueur d'onde qui ne lui est pas favorable. Aussi, et dans un régime d'ablation, la densité critique est rapidement atteinte. Il s'en suit une réflexion des longueurs d'onde les plus longues (**1030 nm**) accrue lorsque la densité critique est dépassée comparé aux longueurs d'onde les plus courtes (**515 nm**). En comparant les tests réalisés entre une impulsion à **1030 nm** de **1 ps** et **10 ps**, il semblerait que les électrons de conduction recombinaison plus rapidement que ceux produits par ionisation, expliquant pourquoi les volumes d'ablaté évoluent peu dans cette configuration. Si les résultats visant à optimiser l'énergie laser déposée dans le but d'accroître le volume d'ablaté ne sont pas concluants pour l'application visée, ces travaux ont permis

une meilleure compréhension des différents processus impliqués lors de l'ionisation des diélectriques en régime d'ablation, en particulier dans le cas d'une irradiation à double impulsion bi-chromatique.

Dans le chapitre 4 a été présenté le deuxième axe de recherche. Les travaux réalisés consistaient à évaluer des fenêtres opératoires sur les caractéristiques laser (fréquence de répétition laser, densité d'énergie et nombre d'impulsions), et sur le motif usiné (géométrie des matrices de sous-faisceaux) pour lesquels l'irradiation simultanée de plusieurs points d'espace de la cible ne provoquait pas de contraintes résiduelles indésirables ou de fissuration dans le matériau à perforer. Cet axe de recherche a été exploré, car il permet potentiellement de réduire drastiquement les temps de perçage en parallélisant le procédé laser. Cependant, comme il a été vu, le perçage laser induit dans le verre une charge thermique significative dont la relaxation peut conduire à l'apparition de contraintes mécaniques résiduelles, voire à la rupture du verre par fissuration. La parallélisation du procédé peut introduire des effets coopératifs entre les sous-faisceaux pouvant amplifier considérablement ces phénomènes. Pour les étudier et déterminer les limites du procédé, différentes géométries ont été produites à l'aide d'un modulateur de phase. Les échantillons ont ensuite été observés en microscopie optique et en microscopie à polarisation croisée afin de comparer les zones de biréfringence aux profils de contraintes prédits par le modèle thermo-élastique. Les expériences ont été réalisées avec des impulsions de 500 fs à 1030 nm. L'influence des paramètres opératoires tels que la géométrie des matrices de sous-faisceaux, de la fréquence de répétition laser, de la fluence et du nombre d'impulsions a été étudiée expérimentalement. Il a été vu qu'en fonction de la géométrie et des paramètres laser, trois phénomènes peuvent apparaître : la fissuration, l'apparition de dommages sous surfacique en segment entre les sous-faisceaux et des zones de contraintes résiduelles avec des zones affectées thermiquement. Les résultats ont montré qu'à des fluences très importantes (57,6 J/cm<sup>2</sup> dans l'expérience) des fissurations entre les sous-faisceaux apparaissent ainsi que des contraintes résiduelles autour des faisceaux lorsque la distance inter-faisceaux correspond entre une et trois fois celle du diamètre du faisceau. Les tendances expérimentales et les effets de coopération ont pu être vérifiés avec le code thermo-élastique 2D développé. Lorsque les densités d'énergies déposées sont trop importantes, de forts gradients de température mènent à une forte dilatation et induisent de fortes contraintes de compression, traction et de cisaillement. En fonction de l'importance de ces contraintes, celles-ci mènent à de la déformation plastique visible dans l'expérience par les contraintes résiduelles ou de la fissuration si les valeurs-limites admissibles du matériau sont dépassées. Le nombre d'impulsions et la fréquence de répétition laser ont une influence déterminante sur l'apparition de contraintes résiduelles, de fissurations ou de zones affectées thermiquement. La tendance représentative de l'ensemble de résultats, est une augmentation la charge thermique du matériau avec l'augmentation du nombre d'impulsion et/ou de la fréquence de répétition. Nous avons vu que l'apparition de dommages en segment n'est pas prédite par le modèle thermo-élastique. Les dommages en segment observés sont systématiquement situés sur l'axe perpendiculaire équidistant à l'axe qui relie deux sous-faisceaux entre eux. Ces dommages en segment pourraient être une conséquence de la collision des ondes acoustiques générées lors des chocs générés par chacun des sous-faisceaux. Le fait que les dommages en segment apparaissent avec un grand nombre d'impulsions peut être associé à une fatigue du matériau, qui finirait par s'endommager à l'endroit où les ondes entrent en collision. Ces travaux ont permis de montrer que le procédé de perçage était parallélisable sans induire dans certaines conditions des fissures ou de zones affectées thermiquement indésirables. Les conditions adaptées pour la multiperforation laser sont des distances inter-faisceaux d'au moins 3 fois le diamètre du faisceau, un nombre d'impulsions inférieur à 1000, et des fluences maximales correspondant à quelques fois le seuil d'ablation en fluence d'ablation.

Ainsi, deux axes ont été explorés pour réduire le temps de perçage. En premier en essayant d'augmenter les volumes ablatés par impulsion en utilisant une double impulsion mono et bi-chromatique à délai variable et pour une durée d'impulsion différente. Pour les paramètres laser considérés, les travaux expérimentaux et théoriques montrent que ce type de mise en forme ne permet pas d'accroître l'énergie laser absorbée et le volume ablaté. Ces travaux ont permis, d'une part, de clarifier l'intérêt du procédé double impulsion mono et bi-chromatique pour le perçage laser. Les résultats ont montrés que le doublage ne permettait pas a priori d'exacerber suffisamment la dépendance des processus (ionisation et chauffage) à la longueur d'onde de **515 nm à 470 fs**. Cependant, de nouvelles études pourraient être réalisées. En effet, il serait intéressant dans un premier temps d'utiliser une impulsion à la 3<sup>ème</sup> harmonique (**343 nm**) à **500 fs** et d'effectuer des tests expérimentaux et théoriques en impulsion unique et de comparer les résultats à ce que ferait une impulsion de **515 nm à 500 fs**. À noter que les modèles prédisent un meilleur dépôt d'énergie pour une impulsion UV par rapport à une impulsion verte de **500 fs**. Puis dans un deuxième temps de réitérer les expériences en double impulsion bi-chromatique avec une impulsion de **343 nm** au lieu de **515 nm**. Ce type d'expérience nécessiterait en revanche des optiques adaptées au transport des deux longueurs d'onde. D'un point de vue industriel et au vu de la complexité du procédé en double impulsion bi-chromatique, il est certainement préférable d'optimiser les paramètres en terme de durée d'impulsion et de longueur d'onde en impulsion unique dans le but d'augmenter les volumes ablatés. Le deuxième moyen pour réduire le temps de perçage consiste à paralléliser le procédé laser. Ce deuxième axe semble plus propice à une industrialisation du procédé de perçage par laser. D'un point de vue expérimental, la principale limitation de la parallélisation est la puissance laser d'une part et la tenue au flux du SLM d'autre part ; cette dernière peut s'avérer problématique à partir d'une centaine de sous-faisceaux, car l'énergie incidente doit être considérable. C'est dans cette optique qu'il serait intéressant d'effectuer des tests de tenue au flux sur le SLM avec un laser femtoseconde **300 W** et d'observer le comportement du SLM d'un point de vue thermique, puis faire des essais expérimentaux. Le mieux serait de réaliser a minima les essais pour une longueur d'onde dans le domaine visible, car les expériences et les résultats de simulation au cours de ces travaux ont montrés qu'une longueur d'onde de **515 nm et 500 fs** est optimale pour maximiser l'énergie laser déposée et le volume ablaté. Ainsi, pour une même épaisseur de matériau, le nombre d'impulsion nécessaire au perçage d'un trou est réduit, réduisant légèrement le temps de perçage.

Afin de mieux comprendre les phénomènes physiques impliqués durant l'ionisation mais aussi durant la relaxation du matériau, des améliorations sur les modèles peuvent être réalisées. Les modèles développés pour calculer le dépôt d'énergie laser visaient à rendre compte des tendances expérimentales, et un bon accord a été trouvé entre les résultats de simulation et l'expérience. Cependant, ces modèles pourraient être plus quantitatifs à forte fluence (au-dessus du seuil d'ablation) en y incorporant la propagation laser en utilisant les équations de Maxwell d'une part et en y intégrant des effets non linéaires d'autre part, comme l'effet Kerr. De plus, les profils d'ablation pourraient être comparés aux résultats de simulation en développant ces codes en 2 ou 3D. Aussi, les modèles pourraient être améliorés en y incorporant des défauts dans la bande interdite de la silice et en considérant les niveaux d'énergie des STE introduits dans la bande interdite lors de l'irradiation laser, ce qui permettrait de se rapprocher davantage d'un diélectrique réel. Lors des tests expérimentaux concernant la parallélisation du procédé de perçage, nous avons vu que les dommages en segment ne sont pas prédits par le modèle. L'hypothèse avancée pour la création de ces dommages est la collision des ondes acoustiques générées par chacun des sous-faisceaux lors de l'irradiation simultanée. Pour vérifier cette hypothèse, le modèle pourrait être amélioré en rétablissant la partie dynamique des

équations, ce qui permettrait de valider certaines hypothèses sur les dommages en segment, comme sa localisation, sa forme et sa distribution d'intensité dans l'espace. Le modèle pourrait être amélioré et généralisé en y incorporant l'hydrodynamisme, car le modèle présenté n'inclut pas les mouvements de matière induits par l'hydrodynamisme et les gradients de pression, de plus il serait possible de tenir compte de la viscosité du matériau pour obtenir un modèle davantage qualitatif et obtenir des résultats plus précis.

Finalement, il est important de préciser que pour tous les travaux, j'ai été en charge du dimensionnement, de la conception, des approvisionnements optiques et mécaniques et de la mise en place des montages et des protocoles expérimentaux. J'ai également construit des outils de métrologie (mesure du délai nul, analyse du profil spatial) ainsi qu'un outil d'observation (microscopie en polarisation croisée). Le banc laser a été entièrement instrumenté et automatisé avec le développement de codes en Python. Un montage électronique a été construit pour réaliser sur mesure un signal du *gate* laser. J'ai pu aussi réaliser de la conception assistée par ordinateur pour concevoir le porte filtre inséré sur la platine de rotation. La pièce a ensuite été usinée au laboratoire CELIA. L'analyse des données a également été entièrement automatisée au regard de la quantité de données obtenues grâce au développement d'un programme Python. Parallèlement à la mise en place des expériences et à leur réalisation, des travaux théoriques ont été menés au CELIA. Les modèles ont été développés en Fortran afin d'étayer la compréhension des résultats expérimentaux et de comprendre le rôle joué par les différents phénomènes physiques sous-jacents. Un modèle pour chaque type d'expérience a été développé. Deux modèles ont été développés pour calculer la densité d'énergie laser absorbée dans le cas de deux sous-impulsions monochromatique et bi-chromatique. Un troisième modèle a été développé pour modéliser la réponse thermo-élastique 2D statique du matériau afin de calculer les contraintes induites par les gradients de température et de potentiellement prédire des zones de fissuration lors de l'irradiation simultanée. Parallèlement à ces travaux de thèse, j'ai eu l'opportunité de réaliser des percages dans du verre destinés pour la microélectronique pour la société Manz. J'ai pu réaliser également des expériences avec un scanner AOD dans de la silice fondue, le but était d'adresser une position différente pour chaque impulsion laser afin de répartir la charge thermique dans le temps et l'espace. J'ai également réalisé des pièces chirales de dimension micrométrique dans des feuilles de cuivre pour des collègues du laboratoire CELIA pour l'étude des champs magnétiques chiraux.

# ANNEXE A. MESURE DE L'INTENSITÉ SPATIALE DU FAISCEAU SUR CIBLE POUR DES FAISCEAUX MONOCHROMATIQUES

Cette annexe est consacrée au dispositif d'imagerie mis en place dans le but d'effectuer la mesure de l'intensité spatiale des faisceaux sur cible avec des impulsions monochromatiques. La connaissance du diamètre du faisceau sur cible est une donnée essentielle pour calculer la densité d'énergie (fluence). Plusieurs techniques existent, certaines par mesure indirecte (le diamètre du faisceau est déduit d'autres observables, en utilisant le diamètre du faisceau avant focalisation) ou par une mesure directe (au plan focal, sur la cible). Dans le cadre de ces travaux, la mesure directe (sur cible) a été utilisée pour plusieurs raisons :

- i. La mesure directe est en général plus fiable.
- ii. La connaissance du mode et la divergence du laser n'est pas une donnée nécessaire.
- iii. Il n'y a pas besoin de faire l'hypothèse que le dispositif de focalisation est parfait.
- iv. Le dispositif permet dans le cas de l'utilisation de deux faisceaux laser monocouleur de régler finement la coaxialité des deux faisceaux.

Lorsque le faisceau laser est focalisé sur des dimensions très petites (1-25  $\mu\text{m}$ ), la densité de pixels n'est pas suffisamment importante pour obtenir une mesure avec une incertitude raisonnable. La Figure 97 représente le pourcentage d'erreur en fonction du taux d'illumination des pixels théoriquement en (a) et expérimentale en (b).

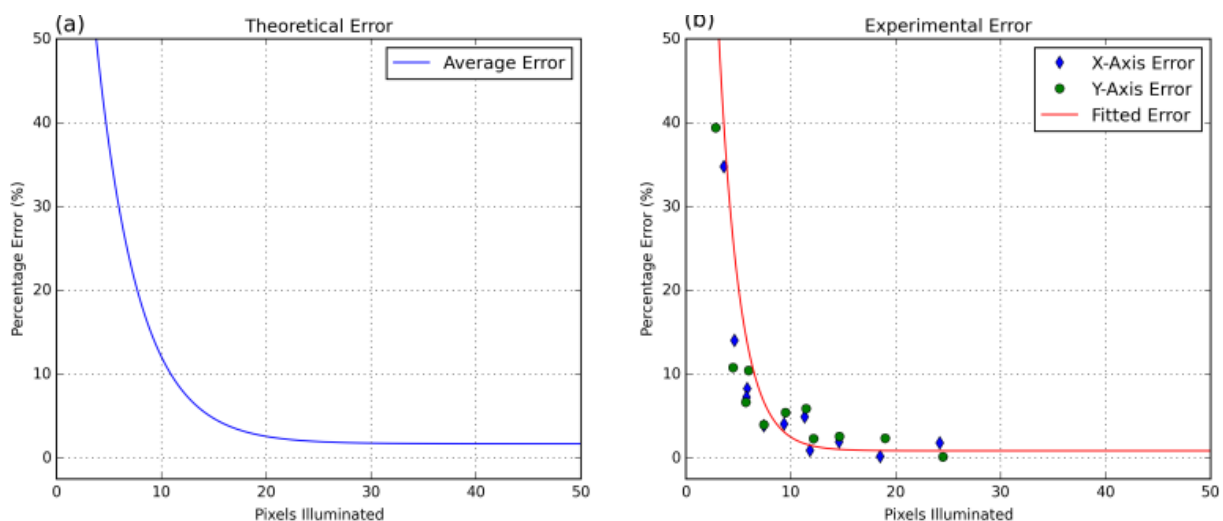


Figure 97. Erreur théorique sur la mesure du diamètre du faisceau en fonction du taux d'illumination de pixel sur l'axe X En (a). Erreur expérimentale sur la mesure du diamètre en fonction du taux d'illumination des pixels sur l'axe X et Y en (b) [178].

Un taux d'illumination d'au moins 15 pixels sur une coupe transverse est requis pour mesurer le diamètre du faisceau à au moins  $\pm 3\%$ . Ce taux d'illumination n'est pas du tout atteint comme l'illustre la Figure 98(a) (image en dehors du plan de focalisation). Pour pallier à ce problème, un dispositif d'imagerie a été construit. Ce dispositif d'imagerie permet d'imager le faisceau focalisé (le *waist*) avec un grossissement X5,1 sur une WinCam comme le montre la Figure 98(b) (Profil 2D au plan focal).

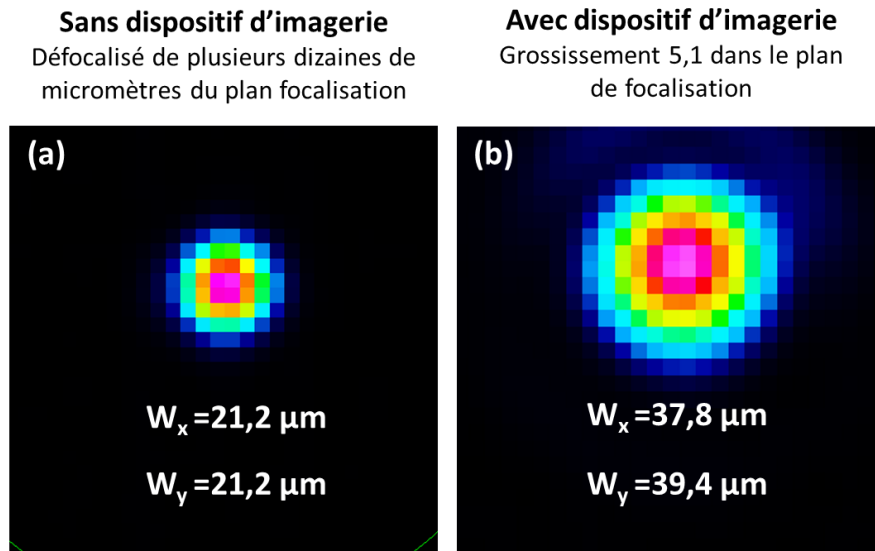


Figure 98. En (a) profil spatial 2D du faisceau à plusieurs dizaines de micromètres du plan de focalisation sans dispositif d'imagerie. (b) Profil spatial 2D du faisceau au plan de focalisation avec dispositif d'imagerie. La taille des pixels sur la caméra est de  $3,3 \mu\text{m}$  en x et y.

Ce système d'imagerie comprend un objectif NIR infrarouge X5 corrigé à l'infini, une lentille de focalisation et une wincam ou caméra CDD. La lentille convexe placée à la distance  $f$  de la caméra permet de réimager le *waist* du faisceau laser sur la caméra (un schéma et une photographie sont données en Figure 99 et Figure 100). Théoriquement, si les distances sont respectées, et si l'objectif et la lentille sont parfaits, le grossissement correspond au grossissement de l'objectif. Néanmoins, le grossissement a été déterminé expérimentalement en utilisant une mire USAF. Les mires USAF sont des modèles ou des formes de fréquence spatiale connue ont été inscrites par photolithographie. Ces dispositifs permettent de vérifier la calibration des systèmes d'imagerie comme les microscopes optiques, les caméras ou les scanners et ils permettent ainsi d'en déduire le grossissement de l'imageur de faisceau. Le grossissement mesuré est de 5,1. Pour observer le faisceau laser, il faut en pratique centrer l'objectif imageur sur le même axe optique que le faisceau focalisé. Ensuite, le plan de focalisation du premier dispositif qui permet de focaliser le faisceau doit coïncider avec le plan de focalisation du second objectif imageur.

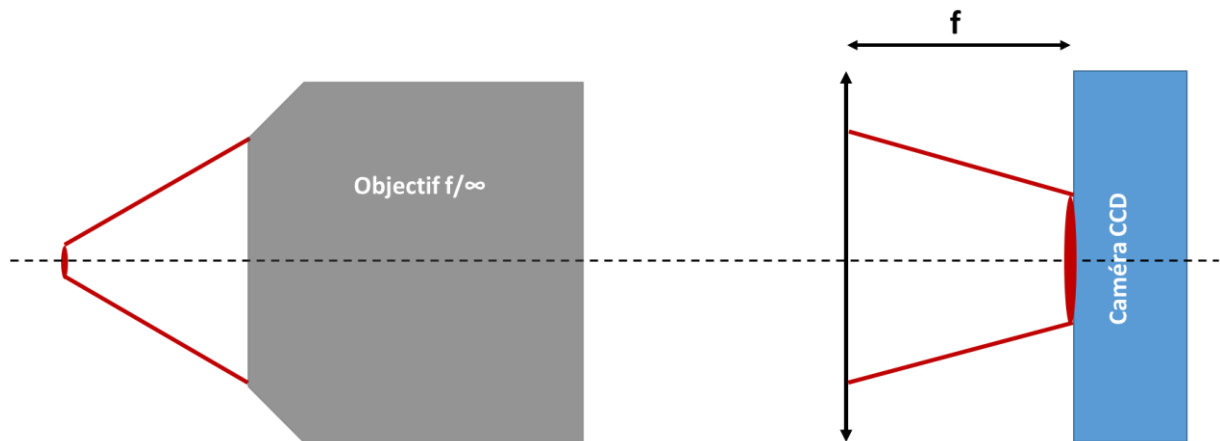


Figure 99. Illustration du dispositif d'imagerie des faisceaux en monocouleur. Le dispositif comprend un objectif adapté à la longueur d'onde laser, une lentille de focalisation et une caméra CCD ou CMOS.

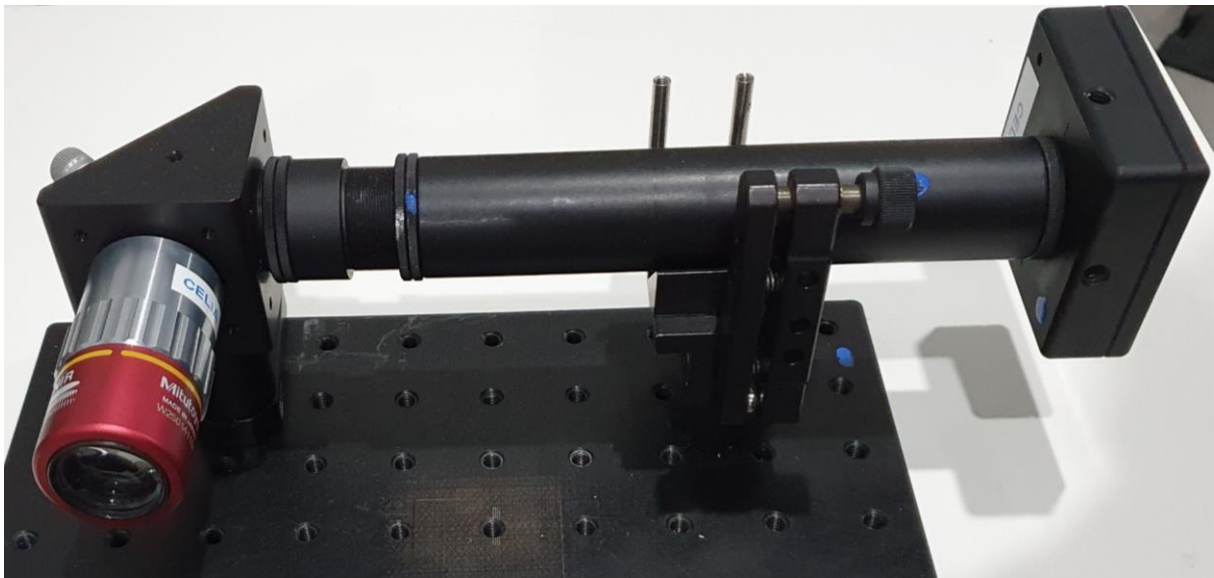


Figure 100. Photographie du dispositif d'imagerie pour des faisceaux monocouleurs.





# ANNEXE B. CALCUL DE L'ABSORPTION LINÉAIRE INDUITE PAR DES ÉLECTRONS LIBRES

---

Dans cette annexe sont reportés des calculs pour l'absorption linéaire des photons sous l'influence d'un champ électrique polarisé linéairement et circulairement.

L'ensemble des forces extérieures s'appliquant à un électron libre est donné par l'Eq. (71) par le modèle de Drude (comme précédemment vue dans la section 1.3.2 du Chapitre 1).

$$m_e \cdot \frac{d^2 \vec{r}_e}{dt^2} = e \vec{E} - \frac{m_e}{\tau_c} \cdot \frac{d \vec{r}_e}{dt} \quad (71)$$

Avec la force du champ électrique  $\vec{F}_{\text{électrique}} = -e \vec{E}$ ,  $\vec{E}$  est le champ électrique laser et une force de frottement  $\vec{F}_{\text{frottement}} = -\frac{m_e}{\tau_c} \vec{v}$ , où  $m_e$  est la masse de l'électron,  $\tau_c$  est le temps moyen de collision des électrons avec les phonons et  $\vec{v}$  est la vitesse de l'électron. Le travail du champ électrique sur l'électron libre sur une période du cycle optique  $T$  est donné par l'Eq. (72), avec  $T = \frac{2\pi}{\omega}$ .

$$W = \frac{1}{T} \cdot \int_0^T \vec{F} \cdot \vec{v} dt \quad (72)$$

### Polarisation linéaire :

Pour un champ électrique polarisé linéairement  $\vec{E} = E_0 \cos(\omega t) \vec{e}_x$ , d'amplitude  $E_0$  et de pulsation  $\omega$ , la position de l'électron est donnée par l'Eq. (73) en résolvant l'Eq. (71).

$$x(t) = \frac{e \tau_c}{m_e \omega_1} \cdot \frac{E_0 \cos(\omega t)}{(1 + \omega^2 \tau_c^2)} \quad (73)$$

Le travail du champ électrique sur une période est donné par l'Eq. (74), avec  $\dot{x}(t)$ , la vitesse de l'électron sur l'axe  $\vec{e}_x$ .

$$W = \frac{1}{T} \cdot \int_0^T -e E_0 \cos(\omega t) \cdot \dot{x}(t) dt \quad (74)$$

$$W = \frac{e^2 E_0^2 \tau_c}{2 m_e (1 + \omega^2 \tau_c^2)}$$

### Polarisation circulaire :

Pour un champ électrique polarisé circulairement et d'intensité identique à une polarisation linéaire  $\vec{E} = \frac{E_0}{\sqrt{2}} \cos(\omega t) \vec{e}_x + \frac{E_0}{\sqrt{2}} \cos(\omega t) \vec{e}_y$ . Le vecteur position  $\vec{r}_e = (x(t) \cdot \vec{e}_x + y(t) \cdot \vec{e}_y)$  de l'électron est alors donné par le système d'équations suivant :

$$\begin{aligned}
 x(t) &= \frac{e \tau_c}{\sqrt{2} m_e \omega_1} \cdot \frac{E_0 \cos(\omega t)}{(1 + \omega^2 \tau_c^2)} \\
 y(t) &= \frac{e \tau_c}{\sqrt{2} m_e \omega_1} \cdot \frac{E_0 \sin(\omega t)}{(1 + \omega^2 \tau_c^2)}
 \end{aligned}
 \tag{75}$$

Le travail du champ électrique polarisé circulairement sur une période est donné par :

$$\begin{aligned}
 W &= \frac{1}{T} \cdot \int_0^T -\frac{eE_0}{\sqrt{2}} (\cos(\omega t) \cdot \dot{x}(t) + \sin(\omega t) \cdot \dot{y}(t)) dt \\
 W &= \frac{e^2 E_0^2 \tau_c}{2 m_e (1 + \omega^2 \tau_c^2)}
 \end{aligned}
 \tag{76}$$

avec  $\dot{x}(t)$  et  $\dot{y}(t)$ , respectivement la vitesse de l'électron sur l'axe  $\vec{e}_x$  et  $\vec{e}_y$  calculée à partir de l'Eq. (75).

Le travail du champ électrique pour une intensité laser identique est strictement le même pour une polarisation linéaire et circulaire du champ électrique laser. L'absorption est indépendante de l'état de la polarisation des photons incidents pour un électron libre.

# ANNEXE C. CALCULS DE LA POLARISATION

## RÉSULTANTE DANS LES CONFIGURATIONS PCCR ET PLC

Cette annexe est dédiée au calcul de l'état de la polarisation résultante pour les configurations Polarisation Circulaire Contre Rotative (PCCR) et de la Polarisation Linéaire Croisée (PLC) présenté dans le Chapitre 2.

### État de polarisation en configuration PCCR.

La différence de phase pour le délai nul entre les deux sous-impulsions ne peut être déterminée en raison de l'incertitude expérimentale sur la définition de la position du délai zéro qui est d'environ  $\pm 133$  fs. Cette dernière valeur correspond à 40 cycles optiques. La différence de phase relative au délai nul est notée  $\Delta\varphi$  et elle peut prendre n'importe quelle valeur entre 0 et  $2\pi$  en raison de l'incertitude. Il est important de donner le fait que la ligne à retard ne soit pas asservie n'influe pas significativement sur l'état de la polarisation, car les figures d'interférences obtenues montrent que les variations de phase engendrées par le bruit ambiant sont négligeables.

Pour un délai nul, la polarisation résultante est toujours linéaire pour toute valeur de  $\Delta\varphi \in [0, 2\pi]$ . La direction de la polarisation linéaire dépend en revanche de la valeur de la phase  $\Delta\varphi$  entre chaque sous-impulsion. Néanmoins, comme la valeur de la phase n'affecte pas l'état de polarisation, le degré d'ellipticité peut être défini comme le rapport entre l'intensité  $I_1(t)$  et  $I_2(t)$  des deux sous-impulsions. L'état de la polarisation résultante  $P_{\text{état}}(t)$  est calculé à l'aide des équations présentées dans le Tableau 16 et des conditions limites correspondantes.

Tableau 16. Calcul de l'état de polarisation résultant dans la configuration CRCP. Avec  $P_{\text{état}}(t) = 0$  la polarisation est circulaire et avec  $P_{\text{état}}(t) = 1$  elle est linéaire.

Calcul de l'état de polarisation résultant	Condition
$P_{\text{state}}(t) = \frac{I_1(t)}{I_2(t)}$	$\frac{I_1(t)}{I_2(t)} < 1$
$P_{\text{state}}(t) = \frac{I_2(t)}{I_1(t)}$	$\frac{I_2(t)}{I_1(t)} < 1$
$P_{\text{state}}(t) = 1$	$I_1(t) = I_2(t)$

Il s'ensuit que la polarisation résultante est linéaire lorsque  $I_1(t) = I_2(t)$  alors qu'elle est circulaire lorsque  $I_1(t) \ll I_2(t)$  ou  $I_2(t) \ll I_1(t)$  et elliptique autrement. La Figure 101 présente l'évolution de l'intensité normalisée de chaque sous-impulsion, l'intensité cumulative et l'état de polarisation résultant en fonction du temps pour des délais de : 0, 267, 500 et 1000 fs. Ainsi, en introduisant un

décali entre les deux sous-impulsions, la polarisation résultante **(i)** tend vers une polarisation linéaire lorsque les amplitudes des deux sous-impulsions tendent vers la même valeur, **(ii)** devient principalement elliptique lorsque le décali devient plus important et enfin **(iii)** tend vers une polarisation circulaire lorsque les deux sous-impulsions ne se chevauchent plus.

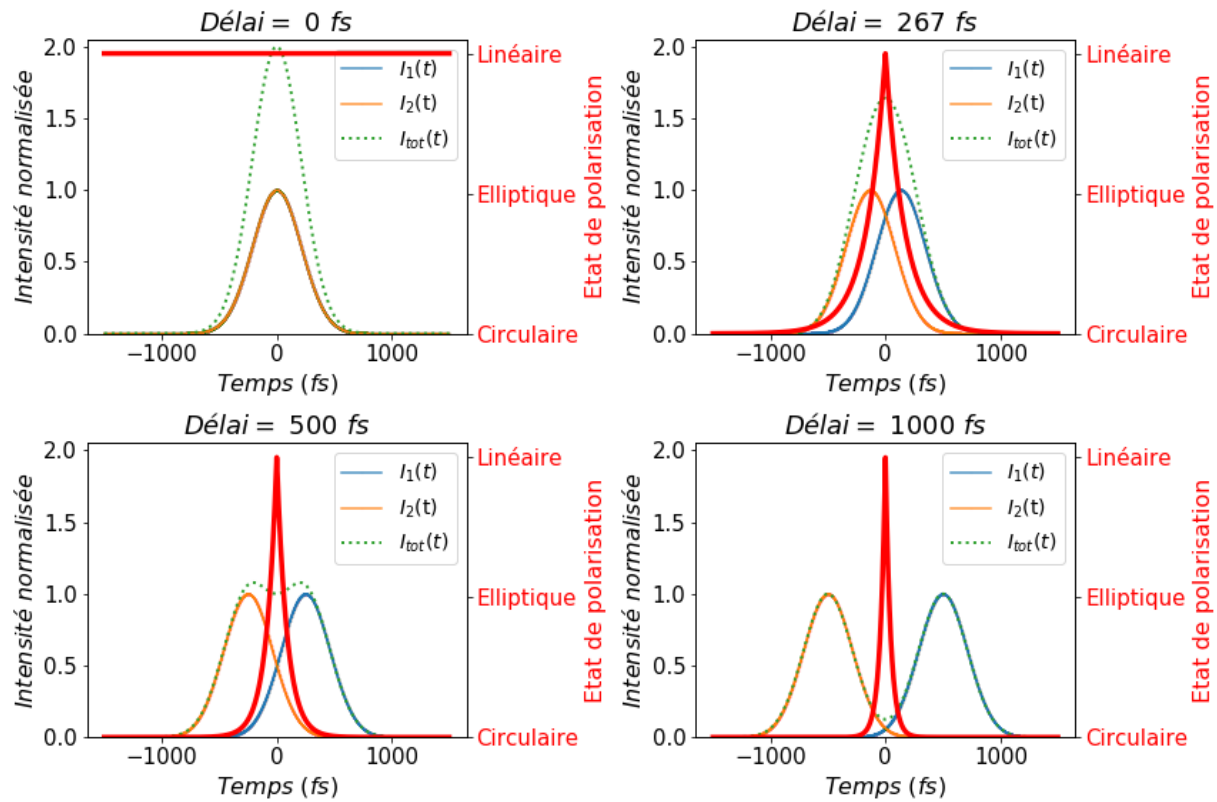


Figure 101. Calcul de l'état de polarisation résultant dans la configuration CRCP. Avec  $P_{\text{état}}(t) = 0$ , la polarisation est circulaire et avec  $P_{\text{état}}(t) = 1$ , elle est linéaire.

La polarisation résultante  $P_{\text{état}}(t)$  permet de calculer le rapport moyen de l'ellipticité pour un décali d'impulsion donné est définie suivant la relation suivante :

$$\frac{\sum(P_{\text{state}}(t) \times I_{\text{tot}}(t))}{\sum I_{\text{tot}}(t)} \quad (77)$$

Avec  $I_{\text{tot}}(t)$  l'intensité totale des deux sous-impulsions. Lorsque la polarisation résultante est supérieure à 70% de degré d'ellipticité (valeur choisie arbitrairement), alors celle-ci est considérée comme une **polarisation linéaire**. Les résultats de ces calculs conduisent aux valeurs de pourcentage de polarisation linéaire présentées dans la Figure 43(a).

### Configuration de la polarisation linéaire orthogonale (PLC)

Pour un délai nul dans ce cas, pour  $\Delta\varphi = 0 [2\pi]$ ,  $\Delta\varphi = \pi [2\pi]$  ou  $\Delta\varphi = 2\pi [2\pi]$  la polarisation résultante est linéaire. Pour  $\Delta\varphi = \frac{\pi}{2} [2\pi]$  la polarisation résultante est circulaire gauche. Pour  $\Delta\varphi = -\frac{\pi}{2} [2\pi]$ , la polarisation résultante est circulaire droite. Hormis ces quatre cas particuliers, avec  $\Delta\varphi \in ]0, \frac{\pi}{2}[ \cup ]\frac{\pi}{2}, \pi[ \cup ]\frac{\pi}{2}, \frac{3\pi}{2}[ \cup ]\frac{3\pi}{2}, 2\pi[$  la polarisation résultante est elliptique et le degré d'ellipticité dépend du rapport d'intensité des deux sous-impulsions. Ainsi, pour un délai nul et en moyenne, la polarisation résultante est principalement elliptique. Lorsqu'un délai est introduit entre les deux sous-impulsions, la polarisation résultante dépend de la différence de phase entre les deux sous-impulsions tant qu'il y a un chevauchement. Pour  $\Delta\varphi = 0 [2\pi]$ ,  $\Delta\varphi = \pi [2\pi]$  ou  $\Delta\varphi = 2\pi [2\pi]$  la polarisation résultante est linéaire, alors que pour  $\Delta\varphi \in ]0, \pi[ \cup ]\pi, 2\pi[$  la polarisation est elliptique. Ainsi, la polarisation résultante est principalement elliptique lorsqu'il y a un chevauchement, quel que soit le délai entre les impulsions. Le degré d'ellipticité dépend du rapport entre les intensités des deux sous-impulsions et leur différence de phase  $\varphi$ . L'état de polarisation  $P_{\text{état}}(\mathbf{t})$  peut être calculé à tout moment à l'aide des équations et des conditions présentées dans le Tableau 17.

Tableau 17. Calcul de l'état de polarisation résultante dans la configuration PLC.  $A(\mathbf{t})$  est donné par l'Eq. (78).

Calcul de l'état de polarisation	Condition
$P_{state}(\mathbf{t}) = A(\mathbf{t}) \times \frac{I_1(\mathbf{t})}{I_2(\mathbf{t})}$	$\frac{I_1(\mathbf{t})}{I_2(\mathbf{t})} < 1$
$P_{state}(\mathbf{t}) = A(\mathbf{t}) \times \frac{I_2(\mathbf{t})}{I_1(\mathbf{t})}$	$\frac{I_2(\mathbf{t})}{I_1(\mathbf{t})} < 1$
$P_{state}(\mathbf{t}) = A(\mathbf{t})$	$I_1(\mathbf{t}) = I_2(\mathbf{t})$

Le coefficient d'ellipticité  $A(\mathbf{t})$  est calculé comme suit :

$$A(\mathbf{t}) = \left( \frac{E_1(\mathbf{t})}{E_1} \right)^2 - 2 \left( \frac{E_1(\mathbf{t})}{E_1} \right) \left( \frac{E_2(\mathbf{t})}{E_2} \right) \cos(\varphi) + \left( \frac{E_2(\mathbf{t})}{E_2} \right)^2 \quad (78)$$

Où  $E_1(\mathbf{t})$  et  $E_2(\mathbf{t})$  sont respectivement les champs électriques de la première et de la deuxième sous-impulsion avec  $E_1$  et  $E_2$  respectivement leur amplitude maximale.  $\varphi$  est définie comme  $\varphi = \Delta\varphi + \varphi_{\text{délai}}$ . Où  $\Delta\varphi$  est la différence relative de phase au délai nul en raison de l'incertitude sur la position du délai nul.  $\varphi_{\text{délai}}$  correspond à la phase équivalente à un délai d'impulsion à impulsion donné.

Comme dans la configuration PCCR, l'état de polarisation résultant  $P_{\text{état}}(\mathbf{t})$  défini dans le Tableau 17 permet de calculer le rapport moyen de l'ellipticité pour un délai d'impulsion donné par l'Eq. (77). Dans cette configuration (PCCR), un graphique équivalent à la Figure 101 ne peut être réalisé, car l'état de polarisation au cours de l'interaction dépend de la phase, or celle-ci n'est pas connue due à la précision pour positionner le délai qui dépasse l'intervalle  $[0, 2\pi]$ . En revanche, au fur et à mesure que le recouvrement temporel décroît entre les deux impulsions, la proportion de polarisation linéaire globale devient de plus en plus conséquente quelle que soit la phase.



# ANNEXE D. MESURE DE L'INTENSITÉ SPATIALE DU FAISCEAU SUR CIBLE POUR DES FAISCEAUX BI- CHROMATIQUES

---

Cette annexe est dédiée au calcul du diamètre du faisceau focalisé pour des faisceaux de plusieurs couleurs.

Le dispositif présenté en Annexe A ne peut pas d'être utilisé en présence de deux faisceaux de deux couleurs différentes, car les optiques utilisées pour le grossissement du faisceau sont réalisées pour une longueur d'onde spécifique. Pour mesurer le diamètre des deux faisceaux, une caméra CMOS est directement insérée dans le plan focal, sans densité optique pour ne pas changer la propagation des faisceaux comme illustre la Figure 102. Cependant, les faisceaux doivent être drastiquement atténués avant le dispositif de focalisation en combinant des lames demi-onde, cubes polariseurs et des densités optiques. De plus, la mesure doit être réalisée dans le noir afin de réduire le bruit ambiant, puisque aucune densité n'est présente sur la caméra permettant de réduire le bruit ambiant.

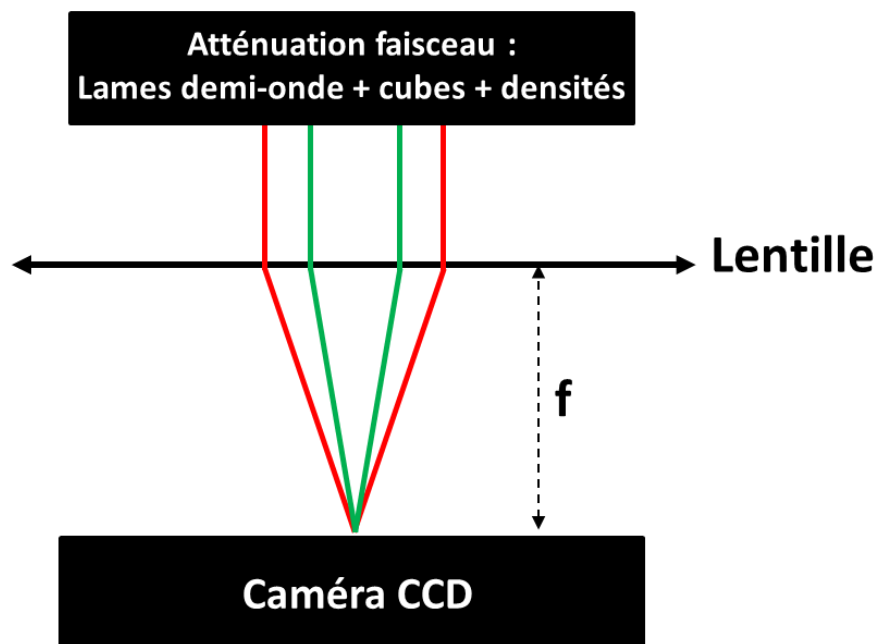


Figure 102. Illustration de la mesure des diamètres de focalisation des différents faisceaux au point de focalisation.

La visualisation des deux faisceaux sur la caméra CCD permet d'une part de contrôler et corriger les plans de focalisation de chaque longueur d'onde dans un unique plan de focalisation en réglant la divergence sur l'un des faisceaux. Aussi, cela permet d'ajuster au mieux les diamètres des faisceaux



en grossissant un des faisceaux avec un agrandisseur de faisceau. Un code Python a été réalisé afin de visualiser le faisceau sur la caméra CCD comme illustrée en Figure 103. Ensuite, le diamètre du faisceau est mesuré par deux techniques différentes (Figure 104(a)). La première technique consiste à réaliser une régression en deux dimensions d'une équation gaussienne 2D. L'amplitude, la largeur à  $1/e^2$  en  $x$  et en  $y$  sont retournées (par le programme) ainsi que le niveau du bruit ambiant. La deuxième technique consiste à calculer sur l'ensemble de l'image débruité la surface totale lorsque la valeur des pixels est supérieure à  $1/e^2$  de la valeur maximale d'un pixel de l'image. Ensuite, en faisant l'hypothèse d'un faisceau gaussien, l'énergie est contenue dans une surface  $\pi r^2$  et il est ainsi possible d'en déduire le diamètre moyen du faisceau à  $1/e^2$ .

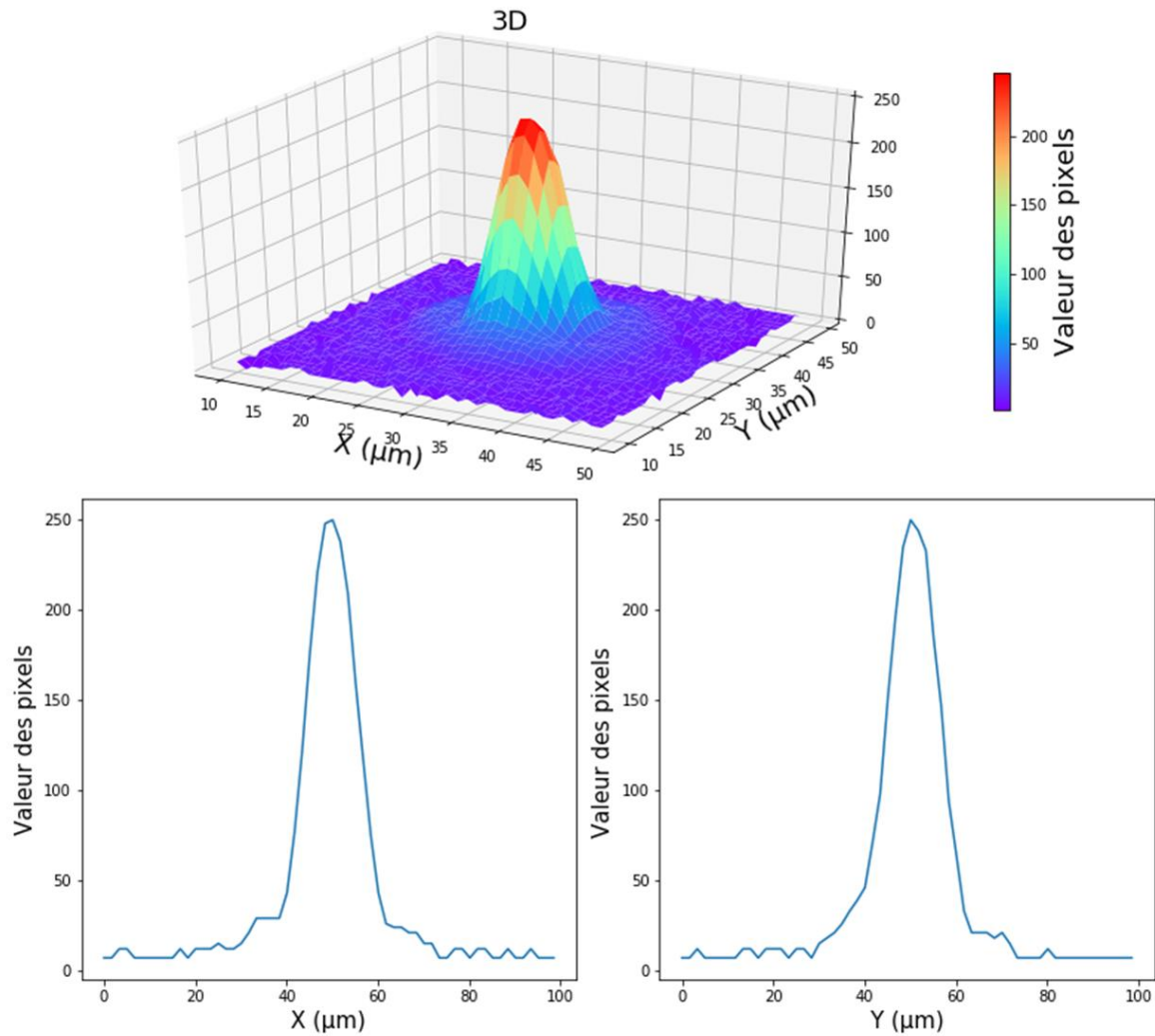


Figure 103. Visualisation du faisceau sous python en 3D et selon une coupe en X et Y centrée sur le faisceau.

Les paramètres obtenus pour la régression en 2D sont ensuite utilisés pour soustraire de l'image, une gaussienne théorique équivalente donnant le résidu sur la Figure 104(b). Il est à noter que le diamètre du faisceau obtenu par ces deux techniques est résumé dans le Tableau 18 et elles donnent des résultats très similaires. La différence sur le diamètre du faisceau calculé entre ces deux techniques est de  $0,01 \mu\text{m}$ , valeur bien inférieure aux incertitudes de mesure.

Tableau 18. Valeur des coefficients de la régression linéaire 2D et du diamètre de faisceau calculé par la deuxième technique.

<i>Amplitude</i>	250
<i>W<sub>x</sub></i>	10,20 $\mu m$
<i>W<sub>y</sub></i>	10,45 $\mu m$
<i>Bruit moyen</i>	8,83
<i>W<sub>moyen</sub> (deuxième technique)</i>	10,35 $\mu m$

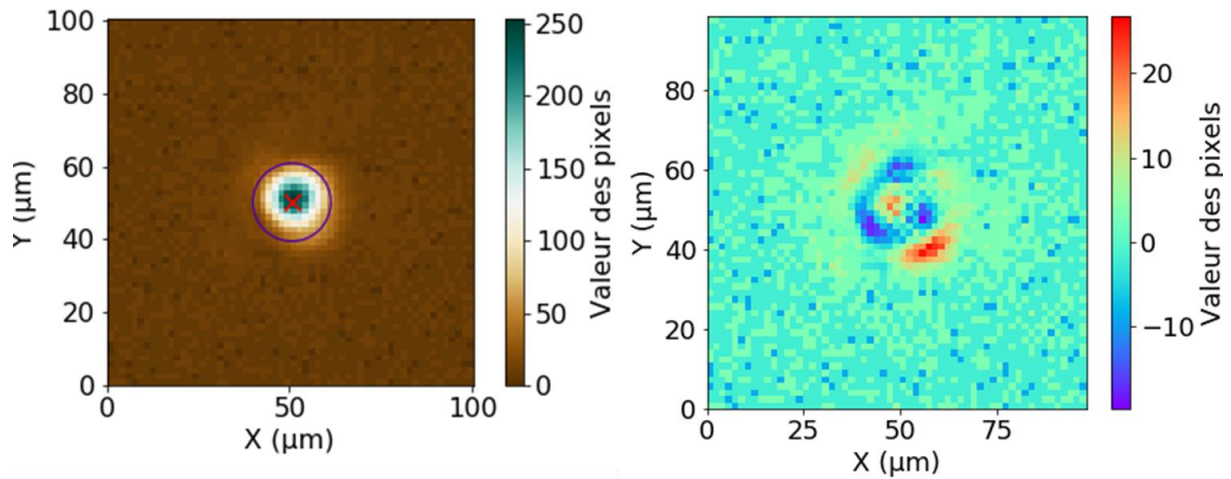


Figure 104. En (a) est illustré en cercle rouge le diamètre calculé suivant une régression 2D d'une gaussienne. Il est illustré par un cercle bleu le diamètre du faisceau calculé en comparant la surface des pixels dont la valeur est supérieure à  $1/e^2$  à un cercle de surface équivalente. En (b) est tracée l'image réelle moins une gaussienne théorique équivalente calculé par la régression gaussienne en 2D.



# ANNEXE E. AUTOMATISATION DES EXPÉRIENCES ET DE L'ANALYSE DES DONNÉES

---

Cette annexe décrit l'automatisation des expériences et de l'analyse des données brutes mesurées (profil d'ablation, transmission optique) mise en place. L'instrumentation des capteurs et actionneurs a été réalisée en Python. L'annexe se décompose en deux sections. La Section 1 traite de l'automatisation de l'expérience. La Section 2 traite de l'automatisation de l'analyse des données. Les deux sections peuvent se lire indépendamment l'une de l'autre. Ce travail d'automatisation représente un travail personnel important dans des travaux de thèse.

## 1. Instrumentation et automatisation des expériences

Cette section décrit l'instrumentation et l'automatisation du poste d'usinage laser. L'instrumentation est réalisée à plusieurs niveaux, et elle se décompose suivant trois grands modules comme illustrés sur la Figure 48 dans la Section 1 du Chapitre 3. (i) Un module permet la gestion et la régulation du flux laser. (ii) Un deuxième module permet la mesure et l'acquisition des données. (iii) Un dernier module prend en charge les déplacements des platines. Ces différents modules sont décrits ci-après :

### (i) Régulation du flux laser.

Deux platines rotatives motorisées sont placées sur les voies à **1030 nm** (rouge) et à **515 nm** (verte) pour réguler la puissance indépendamment sur chacune de ces deux voies. Des lames demi-onde sont insérées dans ces platines de rotation permettant avec un cube polariseur placé en aval de celles-ci de réguler le flux laser, i.e l'énergie par impulsion jusqu'à la cible. Les platines de rotation communiquent sur un port série avec l'ordinateur et sont indépendantes l'une de l'autre. Un programme Python a été développé en s'appuyant sur des fonctions déjà codées en open-source permettant une interface entre le langage python et le langage C. Les fonctions implémentées sont :

- La communication en écriture et lecture
- Le homing du système.
- La vitesse de rotation
- L'accélération
- L'offset (orientation initiale de la lame demi-onde par rapport à la polarisation du faisceau)
- Le sens de rotation
- La rotation angulaire

## **(ii) Acquisition des données sur la transmission optique**

De la Conception Assisté par Ordinateur (CAO) a été employée afin de réaliser un porte-filtre pouvant s'adapter sur une troisième platine de rotation, analogue à celle utilisé pour la gestion du flux laser. Une photodiode fixe placée en-dessous du porte-filtre rotatif permet de mesurer la transmission indépendamment des autres longueurs d'onde. Cette platine de rotation communique également en port série avec l'ordinateur de la même façon que précédemment énoncé.

La photodiode communique avec le contrôleur Maestro de chez Gentec permettant de mesurer la puissance laser. Un programme Python a été développé pour communiquer également sur un port série. À noter qu'il a fallu créer toute une bibliothèque de fonctions. La liste des fonctions implémentées est la suivante :

- La communication en écriture et en lecture.
- Réglage du calibre en puissance.
- Réglage du calibre en longueur d'onde, car le capteur est calibré suivant un étalonnage spécifique en longueur d'onde.
- Gestion de l'écriture sur le *buffer* permettant le remplissage et le vidage de celui-ci pour enregistrer des mesures.
- D'autres fonctions mineures permettant de surveiller si les consignes ont bien été exécutées.

L'instrumentation du contrôleur permet dorénavant de pouvoir automatiser le changement du calibre en puissance, le calibre en longueur d'onde et aussi l'enregistrement des mesures de puissance directement dans un dossier sur l'ordinateur.

## **(iii) Déplacement des platines.**

Afin de contrôler les mouvements de l'échantillon indépendamment du logiciel fourni par le constructeur des platines motorisées ALIO, une bibliothèque de fonctions a été créée et codée permettant de communiquer avec le contrôleur Delta Tau. La communication est réalisée en connexion SSH via un port Éthernet. Les fonctions implémentées sont les suivantes :

- Communication en lecture et écriture
- Déplacement relatif et absolu des platines sur l'axe X,Y et Z
- Vitesse de déplacement des platines sur chacun des axes.
- Instruction donnant le signal du *gate* au laser.
- D'autres fonctions mineures permettant une surveillance du processus de déplacement.

Chaque module développé pouvant être exécuté de façon autonome via Python, un dernier code a été développé permettant d'orchestrer le fonctionnement de l'ensemble des différents instruments interfacés. Le fonctionnement type est le suivant : avant expérience et sans échantillon, les fluences à utiliser sont adressées à chaque platine de rotation (comportant les lames demi-onde). Le module de gestion de flux et le module de la mesure de la transmission permettent une recherche autonome des angles sur les platines de rotations de manière à attribuer une valeur de fluence à chaque position angulaire sur chacune des platines de rotation. Lorsque la recherche des angles est terminée sur chacune des voies, des fichiers de calibration fluences-angles sont créés. Le système est ensuite prêt

pour réaliser les campagnes d'expériences. La séquence type du programme pour les tests est la suivante :

1. Les fichiers de calibration fluence-angle pour chaque faisceau sont chargés.
2. Le programme réalise une initialisation de l'ensemble des instruments et le système vérifie si les instruments sont fonctionnels.
3. Les platines bougent l'échantillon hors du faisceau, dans le même temps les platines de rotation pour la régulation du flux se positionnent sur leur angle de consigne respectif, tandis que le porte échantillon tourne pour présenter le filtre passe-bande rouge.
4. Le programme ouvre le *gate* laser. Le programme règle sur le contrôleur Maestro le calibre sur la bonne longueur d'onde puis recherche le calibre en puissance le plus approprié pour la mesure. Lorsque le calibre est trouvé, le *gate* laser est fermé.
5. L'enregistrement commence. Le *gate* laser est ensuite réallumé et les platines se déplacent suivant la même trajectoire que celle présentée dans le Chapitre 2. Lorsque le mouvement est terminé, l'acquisition est stoppée et le *buffer* est lu et vidé. Les données lues sont enregistrées dans un fichier sur l'ordinateur.
6. Un nouveau cycle est réitéré avec un positionnement sur le filtre passe-bande vert suivant le même principe comme précédemment décrit pour régler les calibres de la photodiode.
7. Un troisième cycle est réalisé sans filtre. Une longueur d'onde intermédiaire entre **1030 nm** et **515 nm** est choisie pour le calibre sur la longueur d'onde. Il a été vérifié que sur les gammes de puissance considérées, la longueur d'onde intermédiaire d'acquisition n'influe pas sur le résultat.
8. De nouvelles valeurs de fluence à **515 nm** et à **1030 nm** sont attribuées/définies via les lames montées sur les platines de rotation motorisées et l'ensemble des différentes procédures est réitéré.
9. Lorsque la matrice de test en fluence est finie, le délai est changé manuellement à l'aide de la platine de translation montée sur la ligne à retard, puis la procédure de tests est relancée en automatique.

L'automatisation du procédé laser a permis a minima de diviser d'un facteur dix le temps nécessaire pour réaliser ces expériences.

## 2. Automatisation de l'analyse des données

Au regard des quantités de données à analyser, une procédure d'automatisation sur le traitement des données a été réalisée. Un programme Python a été créé permettant de traiter les données brutes issues du profilomètre ainsi que les données de transmission. Les données sont toutes archivées et classées dans des dossiers. À l'issue du dépouillement, des fichiers Excel sont automatiquement remplis et générés permettant de rendre lisible l'ensemble des résultats. Les grandes étapes sur l'automatisation du dépouillement sont brièvement décrites dans ce qui suit.

1. Les cavités sont mesurées au profilomètre optique. Une macro réalisée à partir du logiciel interface du profilomètre optique permet de semi-automatiser la procédure.
2. Un programme développé en Python permet ensuite de convertir les fichiers générés par le profilomètre initialement codé dans un format propriétaire de chez Leica en des fichiers lisibles sous un format « .dat » ou « .txt ».
3. Une correction des données brutes est ensuite réalisée. En effet, comme le montre la Figure 105, le niveau zéro (planéité) est réajusté sur l'ensemble du profil 3D par un algorithme. La coupe sur la Figure 105(c) montre la différence entre les données brutes et les données corrigées pour le défaut de la planéité (il faut définir le plan d'altitude zéro en excluant les zones contenant les cratères d'ablation). Un autre algorithme également fait maison permet de localiser les cratères d'ablation. Lorsqu'un cratère est trouvé, une intégration du volume en dessous du plan d'altitude zéro de celui-ci est réalisée, permettant de déterminer le volume ablaté (Figure 105(d)), le maximum de profondeur est également identifié. Pour chaque cratère, le profil 3D et des coupes sont tracés afin de pouvoir vérifier le bon déroulement du processus.
4. Les données de transmission sont également analysées par le programme suivant la même procédure que celle détaillée dans la Section 1.2 du Chapitre 2. Comme pour l'analyse des volumes, toutes les données sont tracées afin de pouvoir vérifier visuellement le bon déroulement du processus d'analyse.
5. Des fichiers Excel sont automatiquement générés permettant de synthétiser les données sur les volumes des cratères, leur profondeur ainsi que la moyenne de ces observables pour un même jeu de paramètres laser. Les niveaux de transmission optique sont aussi archivés dans le document.
6. Des graphiques sont ensuite réalisés des données issues des volumes ablatés et des transmissions optiques extraits du fichier Excel.

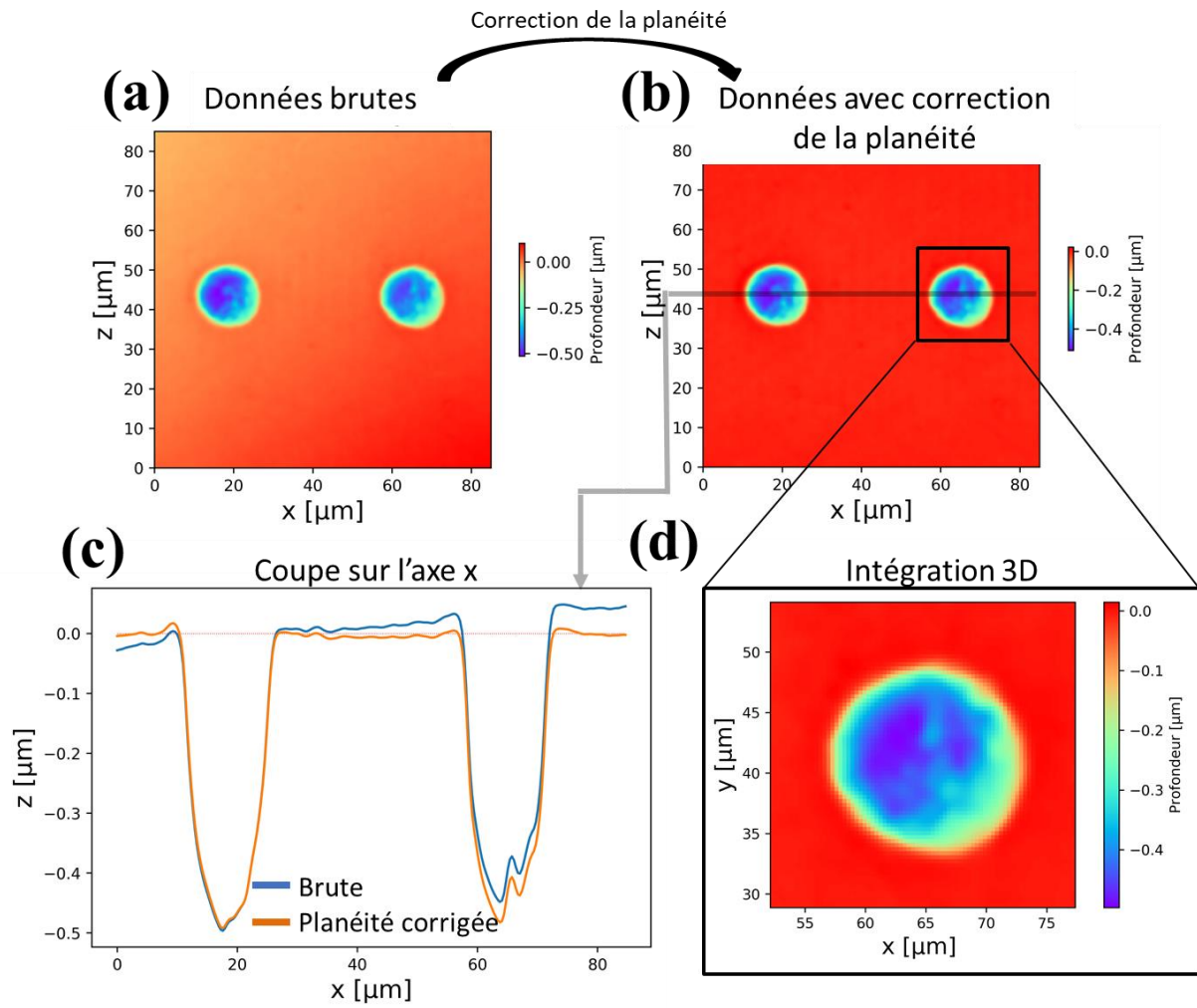


Figure 105. (a) Profil 3D brute et corrigé en (b) après traitement. En (c) est montré une coupe transverse sur l'axe X du profil 3D brut et corrigé. Le trait bleu marque le profil brute et en orange celui corrigé après traitement. En (d) une zone d'intégration est affichée.





# ANNEXE F. SCHÉMA NUMÉRIQUE ET VALIDATION DU MODÈLE THERMIQUE

---

Cette annexe décrit le modèle thermique mise en place dans ces études. La résolution des équations se fait par une méthode numérique de différence finie suivant un schéma de discrétisation dit centré. La diffusion de la température est calculée dans les deux dimensions de l'espace dans un repère cartésien en  $x$  et  $y$ . L'équation à résoudre est donnée par :

$$\frac{\partial T(x, y, t)}{\partial t} = \frac{\lambda_{th}}{\rho \cdot c} \cdot \left( \frac{\partial^2 T(x, y, t)}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T(x, y, t)}{\partial y^2} \right) + Q(x, y, t) \quad (79)$$

La conductivité thermique  $\lambda_{th}$  est supposée constante et indépendante de la température. La discrétisation de cette équation avec un terme source  $Q(x, y, t)$  est donné par :

$$\frac{T_{x_i, y_j}^{t+\Delta t} - T_{x_i, y_j}^t}{\Delta t} = \frac{\lambda_{th}}{\rho \cdot c} \cdot \left( \frac{T_{x_{i+1}, y_j}^t - 2T_{x_i, y_j}^t + T_{x_{i-1}, y_j}^t}{\Delta x^2} + \frac{T_{x_i, y_{j+1}}^t - 2T_{x_i, y_j}^t + T_{x_i, y_{j-1}}^t}{\Delta y^2} \right) + Q \quad (80)$$

Avec  $\Delta x = \frac{x_{i+1} - x_{i-1}}{2}$  et  $\Delta y = \frac{y_{j+1} - y_{j-1}}{2}$ , le pas du maillage suivant l'axe  $x$  et  $y$ .

Le calcul numérique de la diffusion de la température est comparé à une solution analytique. La solution analytique donnée par l'Eq. (81) donne la cartographie dans un espace 2D de la température dans le cas où deux parois adjacentes sont maintenues à la température  $T_{max}$ . Le reste du domaine est initialement à la température ambiante  $T_{ambiante}$ .

$$T_{max} + (T_{max} - T_{ambiante}) \cdot \operatorname{erf}\left(\frac{x}{2\sqrt{kt}}\right) \cdot \operatorname{erf}\left(\frac{y}{2\sqrt{kt}}\right) \quad (81)$$

Le calcul numérique a été réalisé pour un maillage de  $(400 \times 400)$ , la température  $T_{max} = 1300 \text{ K}$  et  $T_{ambiante} = 300 \text{ K}$ . Les résultats de la simulation sont montrés sur une coupe selon l'axe  $x$  par le graphique de la Figure 106 pour des temps de diffusion allant de  $1 \mu\text{s}$  à  $10 \mu\text{s}$ . Les traits pleins correspondent aux calculs numériques et les cercles rouges aux calculs donnés par la solution analytique. Le profil de température évolue et augmente au cours du temps dans le domaine. Les résultats des simulations sont en très bons accords avec le calcul analytique. Les erreurs sont de l'ordre de  $10^{-1} \%$  à  $10^{-3} \%$ . Lorsque les gradients sont importants sur quelques mailles l'erreur relative correspond à l'erreur la plus importante ( $10^{-1} \%$ ), puis l'erreur relative diminue lorsque les gradients de température sont de moins moins importants ( $10^{-3} \%$ ). Lorsque la taille des mailles et/ou le pas en temps est plus faible, l'erreur relative diminue également.

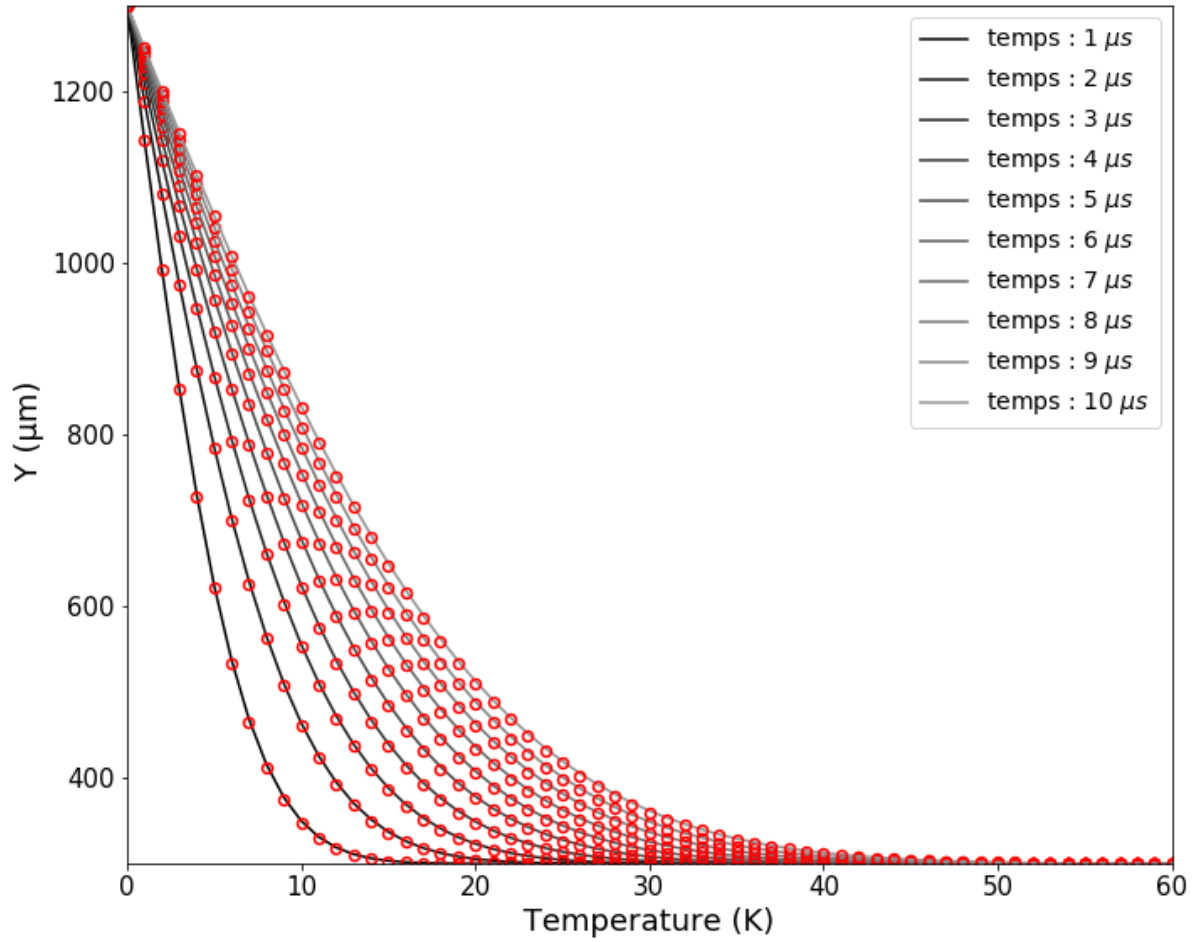


Figure 106. Profil de température calculé numériquement (traits pleins) et analytiquement suivant l'Eq. (81) (cercles rouges) pour différents temps selon une coupe en x.

## ANNEXE G. MICROSCOPE À POLARISATION CROISÉE

Le microscope à lumière polarisée est très utilisé en géologie dans l'étude des roches du fait que certaines d'entre elles ont des propriétés de biréfringences. Dans l'étude des milieux diélectriques transparents comme le verre, le microscope à lumière polarisée permet d'identifier des zones de contraintes. En effet, si un milieu est contraint dû à des différences de pressions au sein du matériau, une biréfringence est induite. Lorsque la direction de polarisation est différente des axes neutres, la polarisation tourne et celle-ci se polarise différemment. En partant de ce fait, il est facile de réaliser un microscope en polarisation croisée afin de visualiser les zones de contraintes résiduelles. Pour ce faire, la lumière doit être polarisée avec un polariseur, puis analysé avec un analyseur. En l'absence de matériau biréfringent entre le polariseur et l'analyseur, aucune lumière ne sera transmise (Figure 107).

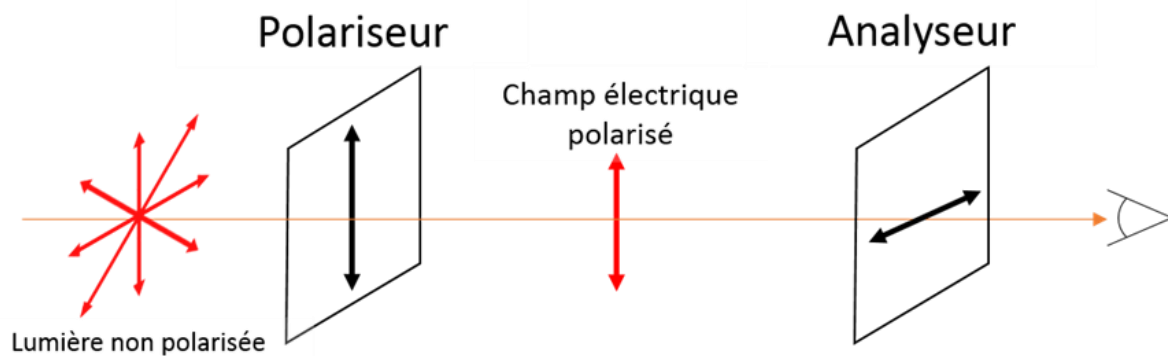


Figure 107. Polariseur et analyseur en polarisation croisée sans échantillon.

Lorsqu'un milieu comporte des zones de biréfringentes, la polarisation tourne et de la lumière est transmise après l'analyseur. Les zones de contraintes se traduisent donc par une variation de l'intensité lumineuse. Cette technique d'observation des contraintes n'est pas quantitative, mais elle permet de visualiser les zones de biréfringences induites par les contraintes résiduelles.

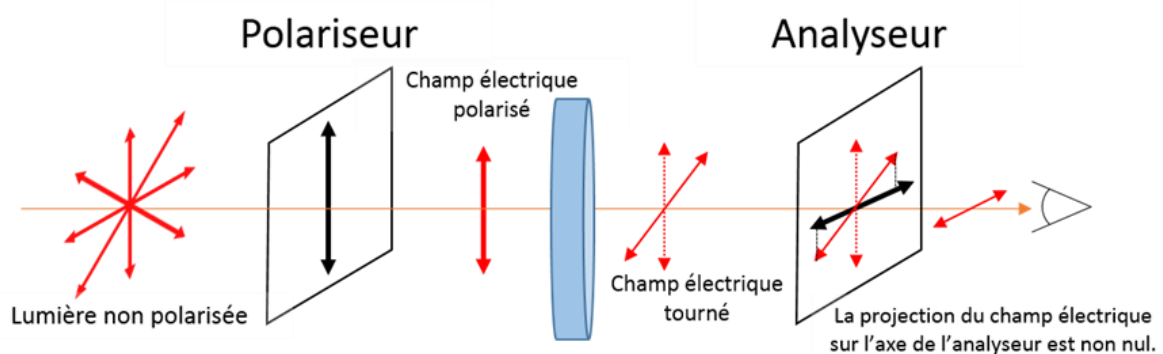


Figure 108. Polariseur et analyseur en polarisation croisée avec un échantillon biréfringent.



# ANNEXE H. SCHÉMA NUMÉRIQUE ET VALIDATION DU MODÈLE THERMO-ÉLASTIQUE

Cette annexe décrit le modèle thermo-élastique mis en place pour les études réalisées dans le chapitre 4. La résolution des équations se fait par une méthode numérique de différence finie suivant un schéma de discrétisation dit centré. Deux cas sont traités, en régime d'équilibre avec et sans force extérieure. Le schéma numérique est détaillé dans chaque configuration. Les Sections 1 et 2 peuvent se lire indépendamment l'une de l'autre.

## 1. Résolution de l'équation de Navier

### 1.1. Les équations

Les contraintes résultent d'une déformation qui elle-même peut être déterminée en calculant un champ de déplacement. On notera respectivement  $\vec{u}$  le vecteur déplacement,  $\bar{\epsilon}$  la tenseur déformation, et  $\bar{\sigma}$  le tenseur contrainte. Un déplacement peut être induit par une force  $\vec{f}$ , ou par une différence de température entre deux points, i.e un gradient de température. L'équation d'équilibre donne la relation entre le vecteur déplacement et un gradient de température pour un solide isotrope donné par l'équation de Navier [89] (Eq. (40)) rappelée ci-dessous :

$$\frac{3(1-\nu)}{1+\nu} \overrightarrow{\text{grad}}(\text{div}(\vec{u})) - \frac{3(1-2\nu)}{2(1+\nu)} \overrightarrow{\text{rot}}(\overrightarrow{\text{rot}}(\vec{u})) = \alpha \overrightarrow{\text{grad}}(T)$$

Où  $\alpha$  est le coefficient de dilatation thermique,  $\nu$  est le coefficient de Poisson. L'étude est menée dans les deux dimensions de l'espace  $(x, y)$  d'un repère cartésien. Ainsi, dans ce repère  $u_{zz} = u_{xz} = u_{yz} = u_{zx} = u_{zy} = 0$ . Sur l'axe  $x$  et  $y$ , l'équation (40) devient le système d'équations suivant :

$$C_1 \begin{vmatrix} \frac{\partial}{\partial x} \left( \frac{\partial u_x}{\partial x} + \frac{\partial u_y}{\partial y} \right) \\ \frac{\partial}{\partial y} \left( \frac{\partial u_x}{\partial x} + \frac{\partial u_y}{\partial y} \right) \\ 0 \end{vmatrix} - C_2 \begin{vmatrix} \frac{\partial^2 u_y}{\partial x \partial y} - \frac{\partial^2 u_x}{\partial y^2} \\ \frac{\partial^2 u_x}{\partial y \partial x} - \frac{\partial^2 u_y}{\partial x^2} \\ 0 \end{vmatrix} = \alpha \begin{vmatrix} \frac{\partial T}{\partial x} \\ \frac{\partial T}{\partial y} \\ 0 \end{vmatrix} \quad (82)$$

Avec :  $C_1 = \frac{3(1-\nu)}{1+\nu}$  et  $C_2 = \frac{3(1-2\nu)}{2(1+\nu)}$

Donnant en forme condensée :

$$\begin{aligned} (C_1 \partial_x^2 + C_2 \partial_y^2) u_x + (C_1 - C_2) \partial_{xy}^2 u_y &= \alpha \frac{\partial T}{\partial x} \\ (C_1 \partial_y^2 + C_2 \partial_x^2) u_y + (C_1 - C_2) \partial_{xy}^2 u_x &= \alpha \frac{\partial T}{\partial y} \end{aligned}$$

Il faut maintenant résoudre ce système numériquement et construire un schéma numérique.

### 1.2. Construction du schéma numérique et discrétisation de l'Eq. (82)

Soit le domaine de la Figure 109 avec  $N_x$  le nombre de nœuds sur l'axe  $x$ ,  $N_y$  le nombre de nœuds sur l'axe  $y$ . Pour un domaine carré  $N_x = N_y = N$ .  $\Delta x, \Delta y$  sont respectivement le pas entre les nœuds en  $x$  et en  $y$ . Les nœuds dans la matrice sont implémentés par la lettre  $m$  (Figure 109). Pour des valeurs impaires de  $m$  le nœud correspond à l'axe  $x$  ( $U_x$ ) tandis que les valeurs paires de  $m$  correspondent au nœud de l'axe  $y$  ( $U_y$ ). Une fonction assure le passage de la notation  $U_{i,j}$  en notation ( $m$ ).

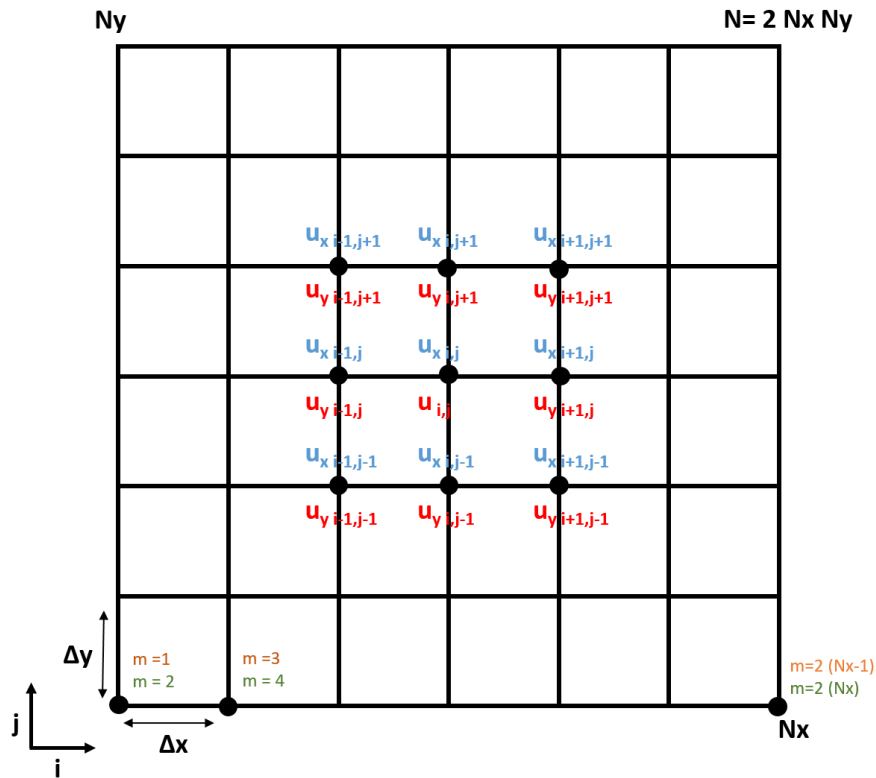


Figure 109. Schéma de discrétisation.

La discrétisation des différents termes intervenant dans l'Eq. (82) est donnée par les relations suivantes :

$$\begin{aligned}
\partial_x^2 u_x &= \frac{u_{x_{i+1,j}} - 2u_{x_{i,j}} + u_{x_{i-1,j}}}{\Delta x^2} \\
\partial_y^2 u_x &= \frac{u_{x_{i,j+1}} - 2u_{x_{i,j}} + u_{x_{i,j-1}}}{\Delta y^2} \\
\partial_{xy}^2 u_x &= \frac{u_{x_{i+1,j+1}} - u_{x_{i+1,j-1}} - u_{x_{i-1,j+1}} - u_{x_{i-1,j-1}}}{4\Delta x\Delta y} \\
\partial_y^2 u_y &= \frac{u_{y_{i,j+1}} - 2u_{y_{i,j}} + u_{y_{i,j-1}}}{\Delta y^2} \\
\partial_x^2 u_y &= \frac{u_{y_{i+1,j}} - 2u_{y_{i,j}} + u_{y_{i-1,j}}}{\Delta x^2} \\
\partial_{xy}^2 u_y &= \frac{u_{y_{i+1,j+1}} - u_{y_{i+1,j-1}} - u_{y_{i-1,j+1}} - u_{y_{i-1,j-1}}}{4\Delta x\Delta y} \\
\Delta x &= \frac{x_{i+1} - x_{i-1}}{2} \\
\Delta y &= \frac{y_{j+1} - y_{j-1}}{2}
\end{aligned} \tag{83}$$

Sur l'axe  $x$ , la détermination des coefficients de la matrice (de l'Eq. (82)) des nœuds n'appartenant pas aux bords du domaine est donnée par les relations suivantes en injectant les relation de l'Eq. (83) dans l'Eq. (82) :

$$\begin{aligned}
u_{x_{i,j}} &= K_1 = -2 \frac{C_1}{\Delta x^2} - 2 \frac{C_2}{\Delta y^2} \\
u_{x_{i+1,j}} &= K_2 = \frac{C_1}{\Delta x^2} \\
u_{x_{i-1,j}} &= K_2 = \frac{C_1}{\Delta x^2} \\
u_{x_{i,j+1}} &= K_3 = \frac{C_2}{\Delta y^2} \\
u_{x_{i,j-1}} &= K_3 = \frac{C_2}{\Delta y^2} \\
u_{y_{i+1,j+1}} &= K_4 = \frac{C_1 - C_2}{4\Delta x\Delta y} \\
u_{y_{i-1,j+1}} &= -K_4 = -\frac{C_1 - C_2}{4\Delta x\Delta y} \\
u_{y_{i+1,j-1}} &= -K_4 = -\frac{C_1 - C_2}{4\Delta x\Delta y} \\
u_{y_{i-1,j-1}} &= K_4 = \frac{C_1 - C_2}{4\Delta x\Delta y}
\end{aligned} \tag{84}$$

Les constantes  $K_i$  correspondent au nom des constantes données dans le code développé. Le membre de droite de l'Eq. (82) comportant le gradient de température suivant  $x$  devient par discrétisation :

$$\begin{aligned}
T_x &= \alpha \frac{T_{i+1,j} - T_{i-1,j}}{2\Delta x} \\
T_x &= L_1 (T_{i+1,j} - T_{i-1,j}) \\
\text{avec } L_1 &= \frac{\alpha}{2\Delta x}
\end{aligned} \tag{85}$$



Sur l'axe  $y$ , la détermination des coefficients (de l'Eq. (82)) des nœuds n'appartenant pas aux bords du domaine est donnée dans par les relations suivantes :

$$\begin{aligned}
 u_{y_{i,j}} &= K_5 = -2 \frac{C_2}{\Delta x^2} - 2 \frac{C_1}{\Delta y^2} \\
 u_{y_{i+1,j}} &= K_6 = \frac{C_2}{\Delta x^2} \\
 u_{y_{i-1,j}} &= K_6 = \frac{C_2}{\Delta x^2} \\
 u_{y_{i,j+1}} &= K_7 = \frac{C_1}{\Delta y^2} \\
 u_{y_{i,j-1}} &= K_7 = \frac{C_1}{\Delta y^2} \\
 u_{x_{i+1,j+1}} &= K_4 = \frac{C_1 - C_2}{4\Delta x \Delta y} \\
 u_{x_{i-1,j+1}} &= -K_4 = -\frac{C_1 - C_2}{4\Delta x \Delta y} \\
 u_{x_{i+1,j-1}} &= -K_4 = -\frac{C_1 - C_2}{4\Delta x \Delta y} \\
 u_{x_{i-1,j-1}} &= K_4 = \frac{C_1 - C_2}{4\Delta x \Delta y}
 \end{aligned} \tag{86}$$

Le membre de droite de l'Eq. (82) comportant le gradient de température suivant l'axe  $y$  devient par discrétisation :

$$\begin{aligned}
 T_y &= \alpha \frac{T_{i,j+1} - T_{i,j-1}}{2\Delta y} \\
 T_y &= L_1 (T_{i,j+1} - T_{i,j-1}) \\
 \text{avec } L_1 &= \frac{\alpha}{2\Delta y}
 \end{aligned} \tag{87}$$

Remarque : lorsqu'un nœud se trouve sur un bord du domaine, la condition Dirichlet est utilisée, i.e que l'on définit le champ de déplacement comme nul sur les bords du domaine. Le coefficient au bord est donc fixé à  $K_1$ . Aussi, le gradient de température est défini comme nul. Avec la diffusion thermique, lorsque le gradient de température ne sera pas suffisamment faible sur les bords du domaine, les résultats seront erronés et il sera alors nécessaire de stopper la simulation.

### 1.3. Propriété de la matrice

Tous les termes discrétisés sont placés dans une matrice appelée  $M$ . La matrice est creuse de dimensions  $N_x N_y \times 2$  ( $2N^2$  si  $N_x = N_y = N$ ) et de largeur de bande  $2N_x + 3$  et est composée de  $2N_x N_y + 2(N_x - 2)^2 \times 4$  termes non nuls.

Un exemple de termes non nuls dans la matrice  $M$  est donné en Figure 110 ci-dessous. Les termes non nuls sont symbolisés par les points bleus pour  $N_x = N_y = N = 5$  :

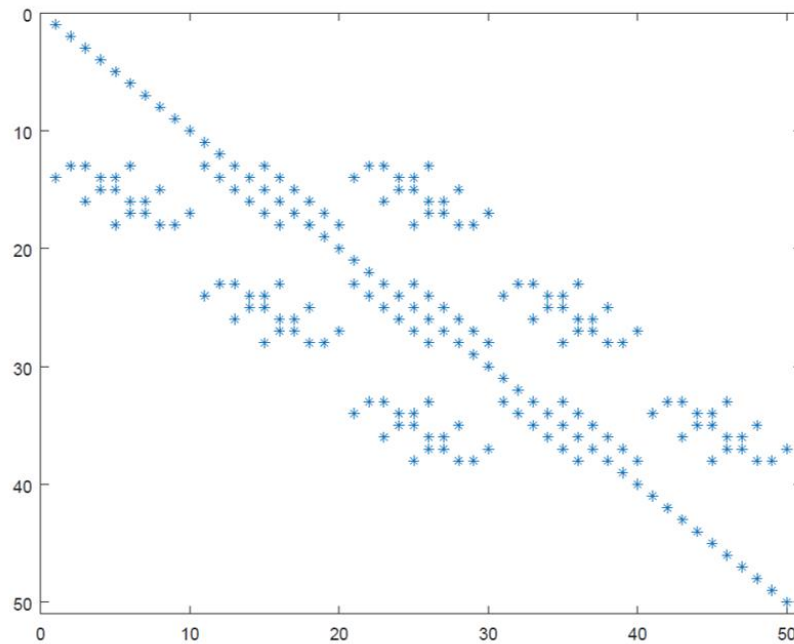


Figure 110. Structure de la matrice M.

## 2. Équation sans force extérieure

### 2.1. Les équations

Sans force extérieure  $\overrightarrow{\text{rot}}(\vec{u}) = \vec{0}$  (il n'y a pas de champ rotatif), car l'application de force extérieure appliquée à la surface apparaît uniquement dans les conditions aux limites et  $\text{div}(\overrightarrow{\text{rot}}(\vec{u})) = \vec{0}$ , l'Eq. (40) devient alors :

$$\frac{3(1-\nu)}{1+\nu} \overrightarrow{\text{grad}}(\text{div}(\vec{u})) = \alpha \overrightarrow{\text{grad}}(T) \quad (88)$$

Le système de l'Eq. (88) sur l'axe  $x$  et  $y$  donne avec  $C_1 = C_2$  :

$$\begin{aligned} (C_1 \partial_x^2 + C_2 \partial_y^2) u_x &= \alpha \frac{\partial T}{\partial x} \\ (C_1 \partial_y^2 + C_2 \partial_x^2) u_y &= \alpha \frac{\partial T}{\partial y} \end{aligned} \quad (89)$$

Il faut maintenant résoudre ce système numériquement et construire un schéma numérique. Ce schéma numérique présenté est celui utilisé pour les simulations présentées dans le Chapitre 4.

## 2.2. Construction du schéma numérique et discrétisation de l'Eq. (89)

Soit le domaine de la Figure 111 avec  $N_x$  le nombre de nœuds sur l'axe  $x$ ,  $N_y$  le nombre de nœuds sur l'axe  $y$ . Pour un domaine carré  $N_x = N_y = N$ .  $\Delta x, \Delta y$  sont respectivement le pas entre les nœuds en  $x$  et en  $y$ . Les nœuds dans la matrice sont implémentés par la lettre  $m$  (Figure 111). Comme précédemment, les valeurs impaires de  $m$  correspondent au nœud de l'axe  $x$  ( $U_x$ ) tandis que les valeurs paires de  $m$  correspondent au nœud de l'axe  $y$  ( $U_y$ ). Une fonction assure également le passage de la notation  $U_{i,j}$  en notation  $(m)$ .

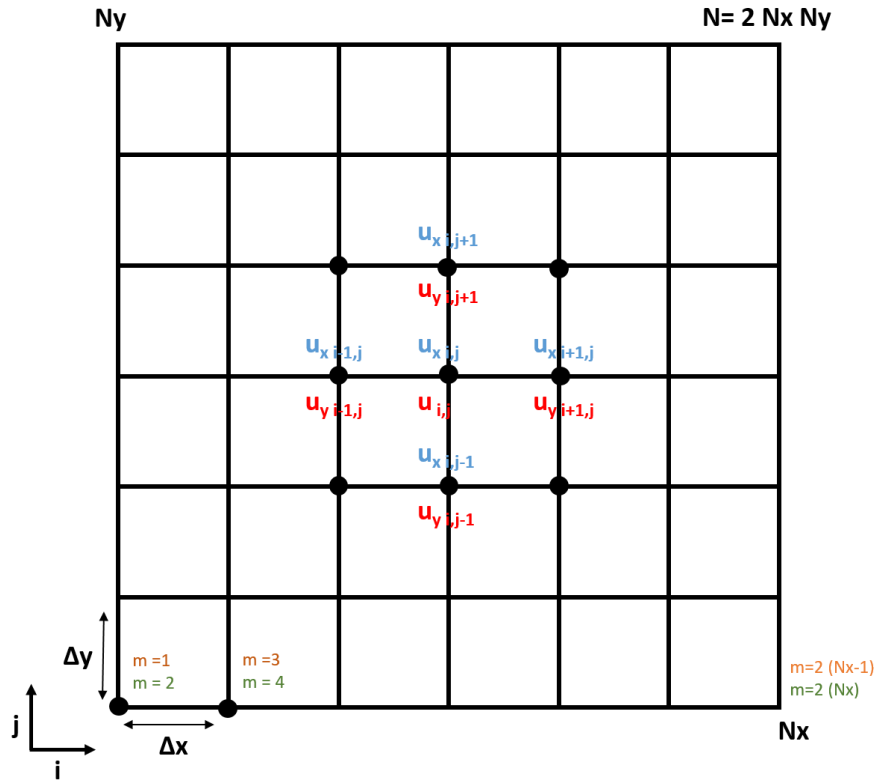


Figure 111. Schéma de discrétisation sans force extérieure.

La discrétisation des différents termes intervenant dans l'Eq. (89) est donnée par les relations suivantes :

$$\begin{aligned}
 \partial_x^2 u_x &= \frac{u_{x_{i+1,j}} - 2u_{x_{i,j}} + u_{x_{i-1,j}}}{\Delta x^2} \\
 \partial_y^2 u_x &= \frac{u_{x_{i,j+1}} - 2u_{x_{i,j}} + u_{x_{i,j-1}}}{\Delta y^2} \\
 \partial_y^2 u_y &= \frac{u_{y_{i,j+1}} - 2u_{y_{i,j}} + u_{y_{i,j-1}}}{\Delta y^2} \\
 \partial_x^2 u_y &= \frac{u_{y_{i+1,j}} - 2u_{y_{i,j}} + u_{y_{i-1,j}}}{\Delta x^2} \\
 \Delta x &= \frac{x_{i+1} - x_{i-1}}{2} \\
 \Delta y &= \frac{y_{j+1} - y_{j-1}}{2}
 \end{aligned} \tag{90}$$

Sur l'axe  $x$ , la détermination des coefficients (de l'Eq. (89)) des nœuds n'appartenant pas aux bords du domaine est donnée par la relation suivante en injectant les relations de l'Eq.(90) dans l'Eq.(89) avec  $C_1 = C_2 = \frac{3(1-\nu)}{1+\nu}$  :

$$\begin{aligned}
 u_{x_{i,j}} &= K_1 = -2 \frac{C_1}{\Delta x^2} - 2 \frac{C_2}{\Delta y^2} \\
 u_{x_{i+1,j}} &= K_2 = \frac{C_1}{\Delta x^2} \\
 u_{x_{i-1,j}} &= K_2 = \frac{C_1}{\Delta x^2} \\
 u_{x_{i,j+1}} &= K_3 = \frac{C_2}{\Delta y^2} \\
 u_{x_{i,j-1}} &= K_3 = \frac{C_2}{\Delta y^2}
 \end{aligned} \tag{91}$$

Les constantes  $K_i$  correspondent au nom des constantes données dans le code développé. Le membre de droite de l'Eq. (89) comportant le gradient de température suivant l'axe  $x$  est le même que celui donné par l'Eq (85). Sur l'axe  $y$ , la détermination des coefficients (dans l'Eq. (89)) de la matrice des nœuds n'appartenant pas aux bords du domaine est donnée par les relations suivantes :

$$\begin{aligned}
 u_{y_{i,j}} &= K_5 = -2 \frac{C_2}{\Delta x^2} - 2 \frac{C_1}{\Delta y^2} \\
 u_{y_{i+1,j}} &= K_6 = \frac{C_2}{\Delta x^2} \\
 u_{y_{i-1,j}} &= K_6 = \frac{C_2}{\Delta x^2} \\
 u_{y_{i,j+1}} &= K_7 = \frac{C_1}{\Delta y^2} \\
 u_{y_{i,j-1}} &= K_7 = \frac{C_1}{\Delta y^2}
 \end{aligned} \tag{92}$$

Le membre de droite de l'Eq. (89) comportant le gradient de température suivant l'axe  $y$  est le même que celui donné dans l'Eq. (87).

Remarque : lorsqu'un nœud se trouve sur un bord du domaine, la condition Dirichlet est utilisée i.e que l'on définit le champ de déplacement comme nul sur les bords du domaine. Le coefficient au bord est donc fixé à  $K_1$ . Aussi, le gradient de température est défini comme nul.

### 2.3. Propriété de la matrice

Tous les termes discrétisés sont placés dans une matrice appelée  $\mathbf{M}$ . La matrice est creuse et composée de  $N_x N_y \times 2$  termes. En prenant  $N_x = N_y = N$ ,  $N$  étant le nombre d'éléments sur une ligne du domaine,  $\mathbf{M}$  est une matrice creuse de dimension  $N^2 \times N^2 = 2N^2$  et de largeur de bande  $2N + 1$  et est composée de  $2N^2 + 2(N - 2)^2 \times 4 \times 2$  termes non nuls. Un exemple des termes non nuls dans la matrice  $\mathbf{M}$  pour  $N_x = N_y = N = 5$  est donné en Figure 112 ci-dessous. Les termes non nuls sont symbolisés par les points bleus.

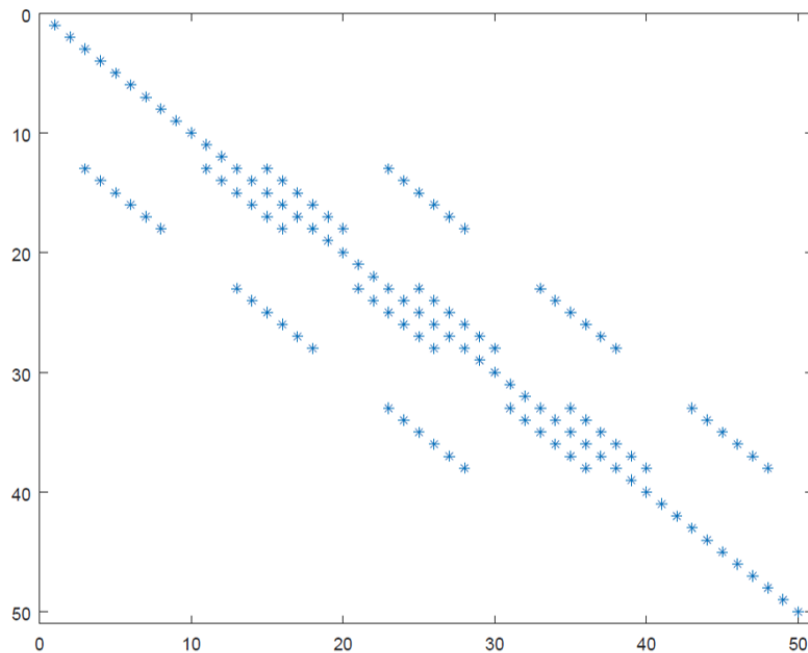


Figure 112. Structure de la matrice  $M$  avec  $\overrightarrow{rot}(\vec{u}) = \vec{0}$ .

### 3. Résolution du système

Le system  $\vec{u}M = \vec{b}$  avec  $\vec{u}$  le vecteur déplacement,  $M$  la matrice et  $\vec{b}$  le vecteur gradient de température est résolu en conditionnant la matrice  $M$  puis en procédant par la méthode dite du gradient conjugué qui est une technique de résolution itérative. Dans le cas de petites déformations, les déformations sont calculées par l'Eq. (39) rappelée ci-dessous :

$$\epsilon_{ik} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_k} + \frac{\partial u_k}{\partial x_i} \right)$$

En connaissant le vecteur  $\vec{u}$  il est alors possible de déterminer le tenseur déformation  $\bar{\epsilon}$  calculé en utilisant l'Eq. (39) :

$$\bar{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} \\ \epsilon_{yx} & \epsilon_{yy} \end{pmatrix}$$

Avec :

$$\begin{aligned} \epsilon_{xx} &= \frac{\partial U_x}{\partial x} \\ \epsilon_{yy} &= \frac{\partial U_y}{\partial y} \\ \epsilon_{xy} &= \frac{1}{2} \left( \frac{\partial U_x}{\partial y} + \frac{\partial U_y}{\partial x} \right) \end{aligned} \tag{93}$$

Où  $\epsilon_{xx}$  est la déformation suivant l'axe  $x$ ,  $\epsilon_{yy}$  la déformation suivant l'axe  $y$  et  $\epsilon_{xy} = \epsilon_{yx}$  la déformation suivant  $xy$ .

Par discrétisation dit centré,  $\epsilon_{xx}$ ,  $\epsilon_{yy}$  et  $\epsilon_{xy} = \epsilon_{yx}$  sont données par les relations suivantes :

$$\begin{aligned}\epsilon_{xx} &= \frac{u_{x_{i+1,j}} - u_{x_{i-1,j}}}{2\Delta x} \\ \epsilon_{yy} &= \frac{u_{y_{i,j+1}} - u_{y_{i,j-1}}}{2\Delta y} \\ \epsilon_{xy} &= \frac{1}{2} \left( \frac{u_{x_{i,j+1}} - u_{x_{i,j-1}}}{2\Delta y} + \frac{u_{x_{i+1,j}} - u_{x_{i-1,j}}}{2\Delta x} \right)\end{aligned}\quad (94)$$

Connaissant le tenseur  $\bar{\epsilon}$  il est possible de déterminer le tenseur contrainte  $\bar{\sigma}$  donné par la relation d'équilibre  $\frac{\delta\sigma_{ik}}{\delta x_{ik}} = 0$  :

$$\bar{\sigma} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} \\ \sigma_{yx} & \sigma_{yy} \end{pmatrix}$$

Avec :

$$\begin{aligned}\sigma_{xx} &= \frac{E_{yg}}{(1+\nu)(1-2\nu)} [(1-\nu)\epsilon_{xx} + \nu\epsilon_{yy}] \\ \sigma_{yy} &= \frac{E_{yg}}{(1+\nu)(1-2\nu)} [(1-\nu)\epsilon_{yy} + \nu\epsilon_{xx}] \\ \sigma_{xy} &= \frac{E_{yg}}{(1+\nu)} \epsilon_{xy}\end{aligned}\quad (95)$$

Où  $E_{yg}$  est le module de Young,  $\nu$  est le coefficient de Poisson.

#### 4. Résolution analytique des contraintes sans force extérieure dans un repère polaire.

Soit un repère polaire  $(0, r, \phi)$ , et une distribution de température purement radiale  $T = T_0 e^{-\frac{r^2}{w_0}}$ , et l'Eq. (88) appelé ci-dessous que l'on cherche à résoudre :

$$\frac{3(1-\nu)}{1+\nu} \overrightarrow{\text{grad}}(\text{div}(\vec{u})) = \overrightarrow{\alpha \text{grad}}(T)$$

Où  $\alpha$  est le coefficient de dilatation thermique et  $\nu$  est le coefficient de Poisson.  $\vec{u}$  est le vecteur déplacement. En calculant l'Eq. (88) dans un repère polaire  $(0, r, \phi)$  pour un gradient de température purement radiale, le déplacement est donné la relation suivante :

$$\begin{aligned}\frac{1}{r} \frac{d(ru)}{dr} &= \frac{\alpha(1+\nu)}{3(1-\nu)} T(r) + C_1 \\ \frac{d(ru)}{dr} &= \frac{\alpha(1+\nu)}{3(1-\nu)} T(r)r + C_1 r \\ ru &= \frac{\alpha(1+\nu)}{3(1-\nu)} \int_0^r T(r)r dr + C_1 \int_0^r r dr \\ u &= \frac{\alpha(1+\nu)}{3(1-\nu)} \frac{1}{r} \int_0^r T(r)r dr + \frac{C_1}{r} \int_0^r r dr\end{aligned}\quad (96)$$

En injectant l'Eq. (96) du calcul du déplacement dans l'Eq. (39) qui lie les déplacements et les déformations, les déformations sont alors données par les relations suivantes :

$$\begin{aligned}\epsilon_{rr} &= \frac{du}{dr} = \frac{\alpha(1+v)}{3(1-v)} \left( \frac{-1}{r^2} \int_0^r T(r)rdr + T(r) \right) + \frac{-C_1}{r^2} \int_0^r rdr + C_1 \\ \epsilon_{\phi\phi} &= \frac{u}{r} = \frac{\alpha(1+v)}{3(1-v)} \frac{1}{r^2} \int_0^r T(r)rdr + \frac{C_1}{r^2} \int_0^r rdr\end{aligned}\quad (97)$$

Les déformations calculées dans l'Eq.(97) permettent de calculer les contraintes par les relations suivantes (en utilisant la relation d'équilibre,  $\frac{\delta\sigma_{ik}}{\delta x_{ik}} = 0$ ) :

$$\begin{aligned}\sigma_{rr} &= \frac{E_{yg}}{(1+v)(1-2v)} [(1-v)\epsilon_{rr} + v\epsilon_{\phi\phi}] \\ \sigma_{\phi\phi} &= \frac{E_{yg}}{(1+v)(1-2v)} [(1-v)\epsilon_{\phi\phi} + v\epsilon_{rr}]\end{aligned}\quad (98)$$

Détermination de la constante  $C_1$ : Si on considère qu'en  $R$  la contrainte radiale et la température sont nulles i.e :  $\sigma_{rr}(r=R) \approx 0$  et  $T(R) \approx 0$  alors lorsque  $R \rightarrow \infty$  la condition est vérifiée ce qui permet dans déduire la constance  $C_1$  donné par l'Eq. (99).

$$\begin{aligned}\sigma_{rr}(R) = 0 &= (1-v) \frac{\alpha(1+v)}{3(1-v)} \left( \frac{-1}{R^2} \int_0^R T(r)rdr + T(R) \right) + (1-v) \frac{-C_1}{R^2} \int_0^R rdr \\ &+ (1-v)C_1 + v \frac{\alpha(1+v)}{3(1-v)} \frac{1}{R^2} \int_0^R T(r)rdr + v \frac{C_1}{R^2} \int_0^R rdr \\ \Leftrightarrow \frac{1}{R^2} \int_0^R T(r)rdr &\left[ \frac{\alpha(1+v)}{3(1-v)} (1-v-v) \right] = (1-v) \frac{C_1}{2} + v \frac{C_1}{2} \\ \Leftrightarrow \frac{1}{R^2} \int_0^R T(r)rdr &\left[ \frac{\alpha(1+v)}{3(1-v)} (1-2v) \right] = \frac{C_1}{2} \\ \Leftrightarrow C_1 &= \frac{\alpha(1+v)}{3(1-v)} \frac{2(1-2v)}{R^2} \int_0^R T(r)rdr\end{aligned}\quad (99)$$

En utilisant l'Eq. (96) et la valeur de  $C_1$  donnée par l'Eq.(99), le déplacement radial obtenu est :

$$\begin{aligned}u &= \frac{\alpha(1+v)}{3(1-v)} \frac{1}{r} \int_0^r T(r)rdr + \frac{\alpha(1+v)}{3(1-v)} \frac{2(1-2v)}{R^2} \int_0^R T(r)rdr \frac{1}{r} \int_0^r rdr \\ u &= \frac{\alpha(1+v)}{3(1-v)} \left[ \frac{1}{r} \int_0^r T(r)rdr + \frac{2(1-2v)}{R^2} \int_0^R T(r)rdr \frac{1}{r} \int_0^r rdr \right] \\ u &= \frac{\alpha(1+v)}{3(1-v)} \left[ \frac{1}{r} \int_0^r T(r)rdr + \frac{2(1-2v)}{R^2} \frac{r^2}{2r} \int_0^R T(r)rdr \right] \\ u &= \frac{\alpha(1+v)}{3(1-v)} \left[ \frac{1}{r} \int_0^r T(r)rdr + (1-2v) \frac{r}{2R^2} \int_0^R T(r)rdr \right]\end{aligned}\quad (100)$$

Avec :

$$\begin{aligned}T(r) &= T_0 e^{-\frac{r^2}{\omega_0}} \int_0^r T(r)rdr = \left[ -\frac{\omega_0}{2} T_0 e^{-\frac{r^2}{\omega_0}} \right]_0^r = -\frac{\omega_0}{2} (T(r) - T_0) \\ T(r \rightarrow \infty) &= \frac{\omega_0}{2} T_0 \quad \text{car } T(R \rightarrow \infty) \approx 0\end{aligned}$$

Les déformations de l'Eq. (97) deviennent alors :

$$\begin{aligned}\epsilon_{rr} &= \frac{du}{dr} = \frac{\alpha(1+\nu)}{3(1-\nu)} \left( \frac{1}{r^2} \frac{\omega_0}{2} (T(r) - T_0) + T(r) - \frac{1-2\nu}{R^2} \frac{\omega_0}{2} T_0 \right) \\ \epsilon_{\phi\phi} &= \frac{u}{r} = \frac{\alpha(1+\nu)}{3(1-\nu)} \left( \frac{1}{r^2} \frac{-\omega_0}{2} (T(r) - T_0) - \frac{1-2\nu}{R^2} \frac{\omega_0}{2} T_0 \right)\end{aligned}\quad (101)$$

En injectant les relations de l'Eq. (71) dans l'Eq. (98), sont déduits  $\sigma_{rr}$  et  $\sigma_{\phi\phi}$ .

Dans un repère en coordonnées polaire, les contraintes principales sont directement obtenues. Elles correspondent aux contraintes principales à un repère cartésien :

$$\bar{\sigma}_{(o,r,\phi)} = \begin{pmatrix} \sigma_{rr} & 0 \\ 0 & \sigma_{\phi\phi} \end{pmatrix} \Leftrightarrow \bar{\sigma}_{(o,x',y')} = \begin{pmatrix} \sigma_I & 0 \\ 0 & \sigma_{II} \end{pmatrix}\quad (102)$$

Afin de vérifier le calcul numérique donnant les contraintes dans un repère cartésien et le calcul analytique donnant les contraintes dans un repère polaire, il convient de se placer dans un même référentiel (repère). Pour vérifier le calcul numérique, les calculs sont vérifiés dans un repère cartésien. Les contraintes analytiques sont donc calculées dans un nouveau référentiel, c'est-à-dire d'un repère polaire à un repère cartésien. Pour ce faire, une matrice de passage  $P$  est déterminée en projetant chaque vecteur unitaire du repère en coordonnées polaires sur la base cartésienne, où  $\vartheta$  représente l'angle entre le vecteur unitaire cartésien et polaire. Le calcul analytique dans le nouveau référentiel cartésien est alors donné dans l'Eq. (103).

$$\begin{aligned}P &= \begin{pmatrix} \cos(\vartheta) & -\sin(\vartheta) \\ \sin(\vartheta) & \cos(\vartheta) \end{pmatrix} \text{ et } P^{-1} = \begin{pmatrix} \cos(\vartheta) & \sin(\vartheta) \\ -\sin(\vartheta) & \cos(\vartheta) \end{pmatrix} \\ \bar{\sigma}_{(o,x,y)} &= \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} \\ \sigma_{yx} & \sigma_{yy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos(\vartheta) & \sin(\vartheta) \\ -\sin(\vartheta) & \cos(\vartheta) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \sigma_{rr} & \sigma_{r\phi} \\ \sigma_{\phi r} & \sigma_{\phi\phi} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos(\vartheta) & \sin(\vartheta) \\ -\sin(\vartheta) & \cos(\vartheta) \end{pmatrix}\end{aligned}\quad (103)$$

Ainsi : avec  $\sigma_{r\phi} = \sigma_{\phi r}$

$$\begin{aligned}\sigma_{xx} &= \sigma_{rr} \cos^2(\vartheta) + \sigma_{\phi\phi} \sin^2(\vartheta) + 2 \sin(\vartheta) \cos(\vartheta) \sigma_{r\phi} \\ \sigma_{yy} &= \sigma_{\phi\phi} \cos^2(\vartheta) + \sigma_{rr} \sin^2(\vartheta) - 2 \sin(\vartheta) \cos(\vartheta) \sigma_{r\phi} \\ \sigma_{xy} &= (\cos^2(\vartheta) - \sin^2(\vartheta)) \sigma_{r\phi} - \sin(\vartheta) \cos(\vartheta) \sigma_{rr} + \sin(\vartheta) \cos(\vartheta) \sigma_{\phi\phi}\end{aligned}$$

Si  $\sigma_{r\phi} = 0$  ce qui est le cas pour un gradient de température purement radial, les termes du tenseur  $\bar{\sigma}_{(o,x,y)}$  sont alors donnés par les relations suivantes :

$$\begin{aligned}\sigma_{xx} &= \sigma_{rr} \cos^2(\vartheta) + \sigma_{\phi\phi} \sin^2(\vartheta) \\ \sigma_{yy} &= \sigma_{\phi\phi} \cos^2(\vartheta) + \sigma_{rr} \sin^2(\vartheta) \\ \sigma_{xy} &= \sin(\vartheta) \cos(\vartheta) (\sigma_{\phi\phi} - \sigma_{rr})\end{aligned}\quad (104)$$



## 5. Vérification

Le code est vérifié pour un faisceau gaussien puis pour plusieurs faisceaux. Il est comparé en tout point de l'espace le tenseur contrainte calculé numériquement comportant les composantes  $\sigma_{xx}$ ,  $\sigma_{yy}$  et  $\sigma_{xy}$  dans un même référentiel cartésien  $(x, y)$  aux contraintes calculées analytiquement. Les contraintes calculées numériquement sont au préalable recalculées dans une base cartésienne en utilisant les relations de l'Eq.(104). Les équations étant linéaires, nous pouvons appliquer le théorème de superposition dans le cas d'une irradiation à plusieurs faisceaux comportant les mêmes caractéristiques. Pour cela, le calcul analytique avec un faisceau est utilisé. La vérification a aussi été réalisée en faisant varier la taille des mailles et la largeur et l'amplitude de la gaussienne sur la température de la matrice. Une seule taille de faisceau et de maille sont présentées ici. À noter que lorsque la taille des mailles diminue, l'erreur diminue.

La Figure 113 montre le calcul numérique et analytique des contraintes pour une distribution gaussienne de la température, l'erreur relative sur le calcul est donnée par la Figure 114. La Figure 115 et Figure 116, montre la même chose mais pour deux distributions gaussiennes de température (deux faisceaux). Pour finir les mêmes calculs sont réalisés dans la Figure 117 et Figure 118 pour trois faisceaux.

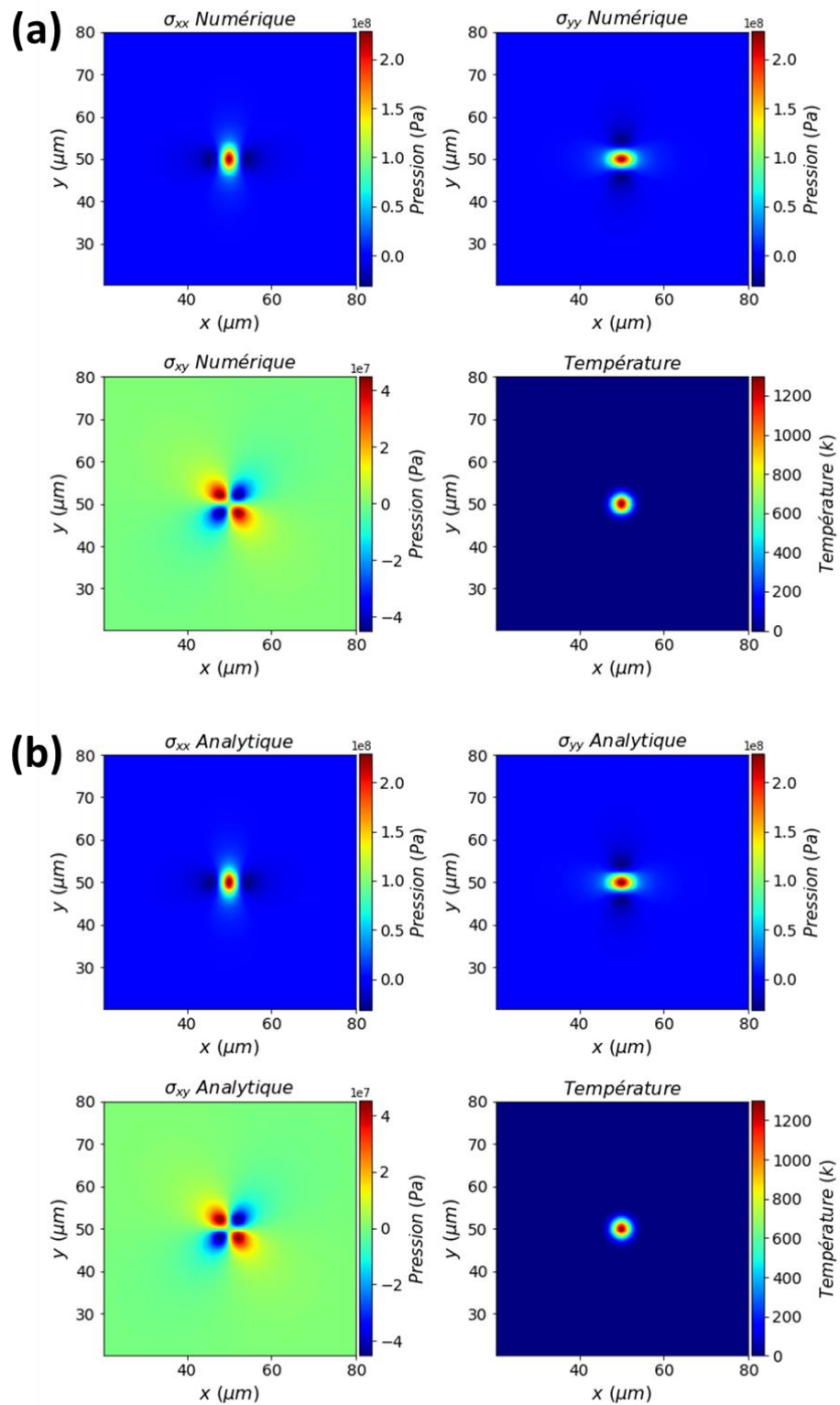


Figure 113. Calcul des contraintes pour une distribution de température avec un faisceau dans une repère  $(x, y)$ . En (a) le calcul numérique et en (b) le calcul analytique pour un maillage de  $250 \text{ nm}$ .

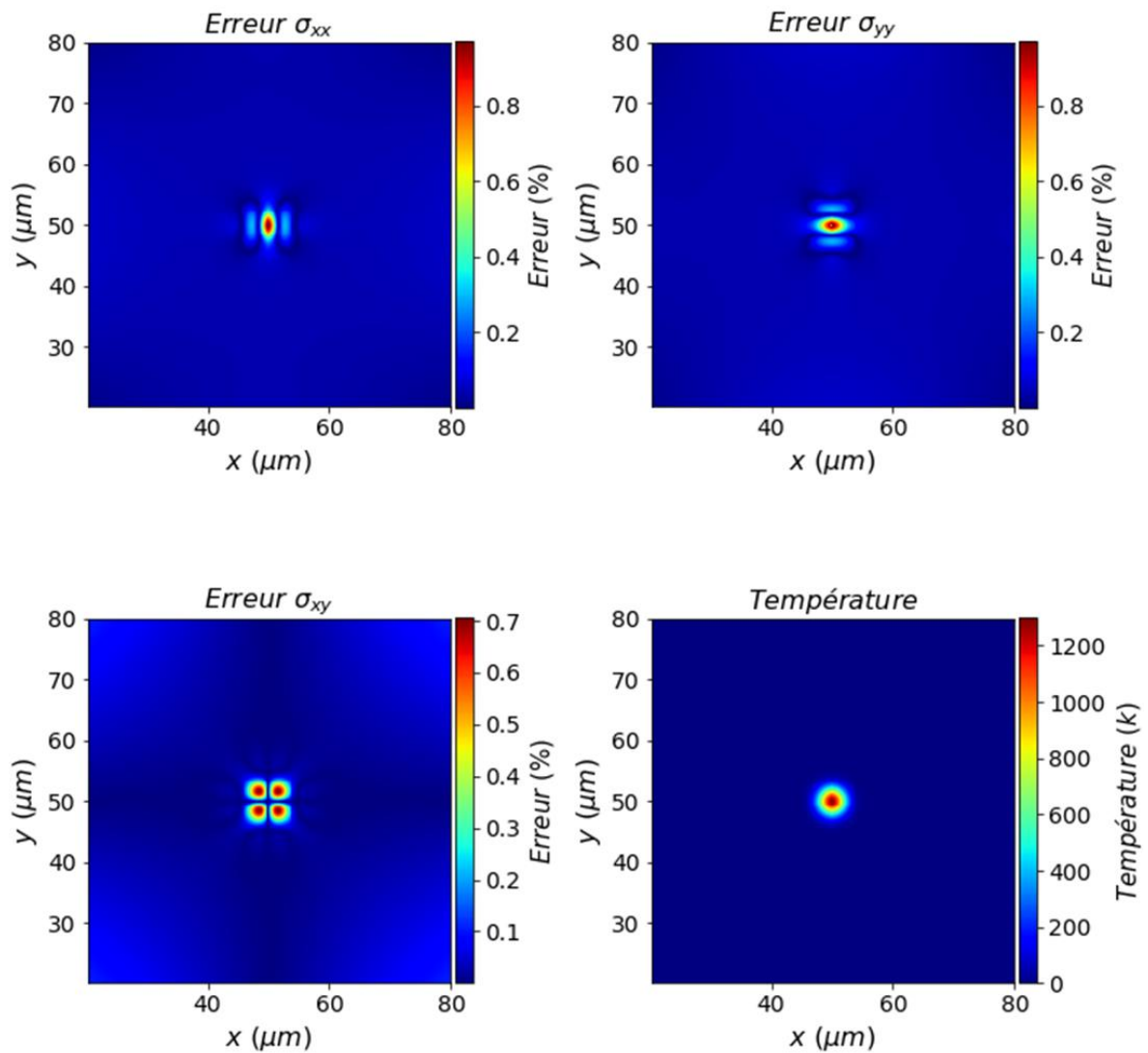


Figure 114. Erreur relative du calcul numérique pour un faisceau et un maillage de 250 nm. Au plus fort l'erreur est de 0,9% sur le calcul des contraintes  $\sigma_{xx}$  et  $\sigma_{yy}$  , puis 0,7 % sur  $\sigma_{xy}$ .

À noter que pour la même configuration, mais avec un maillage deux fois plus fin, c'est-à-dire de 125 nm, l'erreur est divisée par trois environ.

Les calculs présentés ci-après sont réalisés pour deux faisceaux.

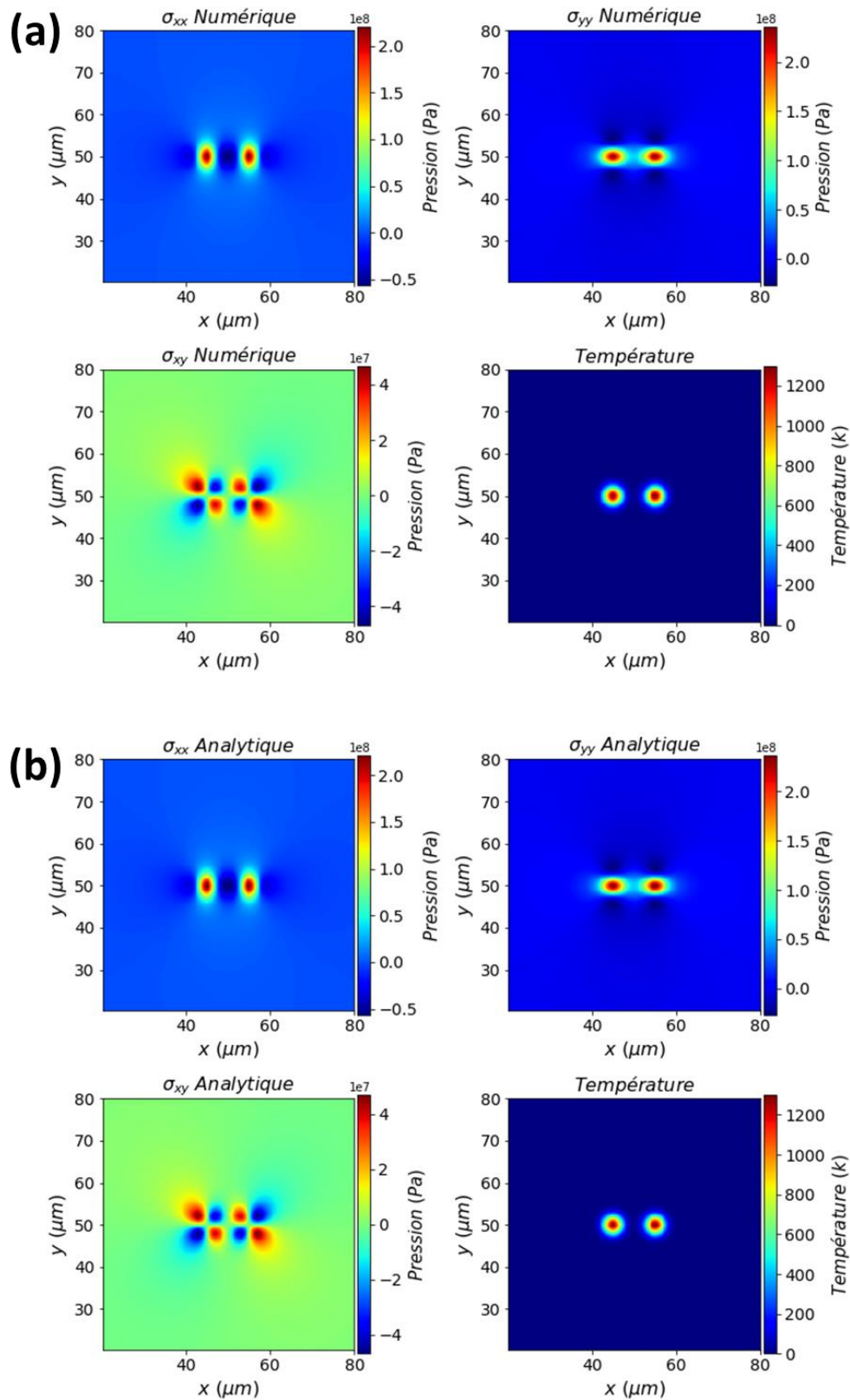


Figure 115. Calcul des contraintes pour une distribution de température avec deux faisceaux dans une repère  $(x, y)$ . En (a) le calcul numérique et en (b) le calcul analytique pour un maillage de 250 nm.

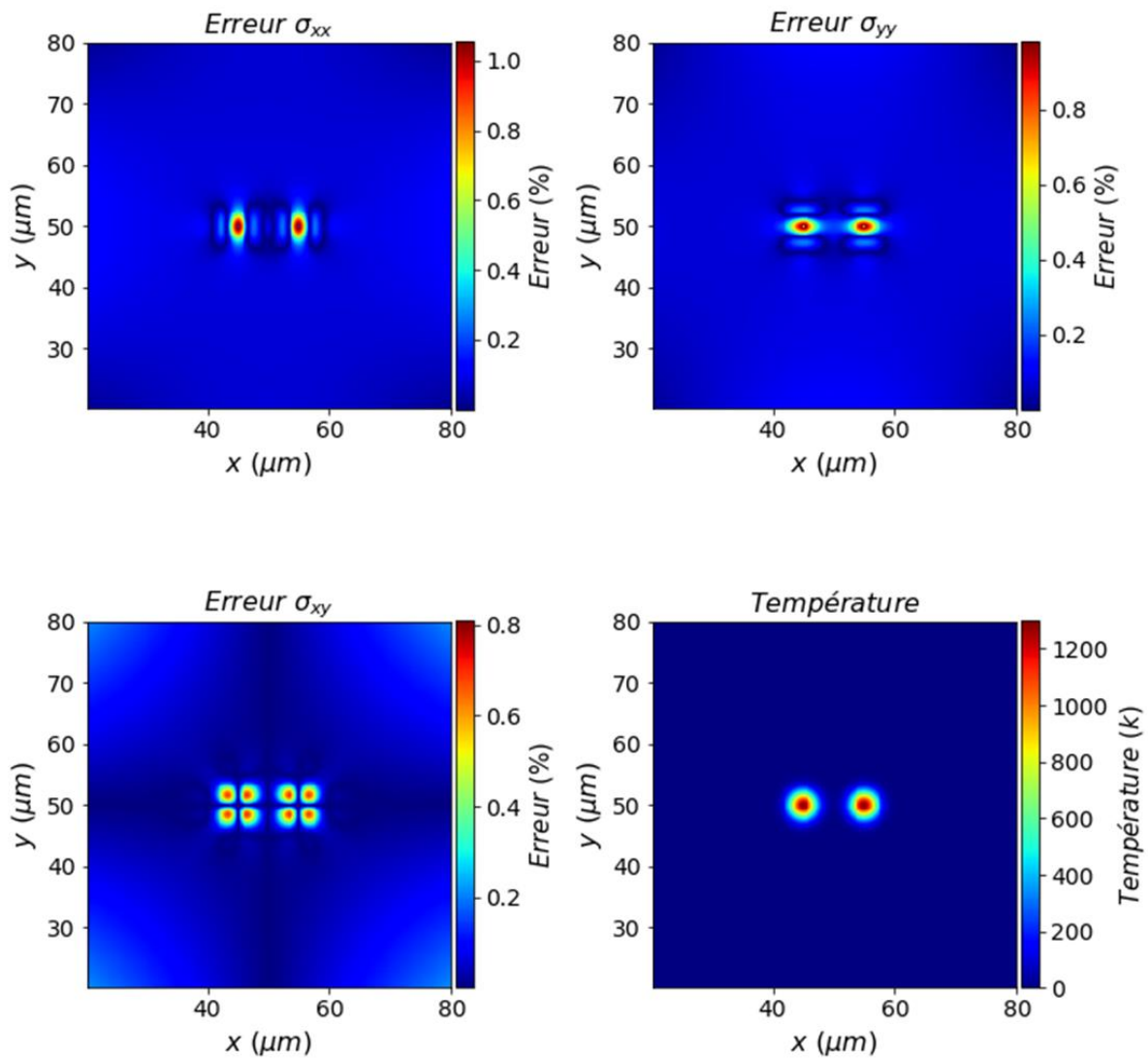


Figure 116. Erreur relative du calcul numérique pour deux faisceaux et un maillage de 250 nm. Au plus fort l'erreur est de 1% sur le calcul des contraintes. 0,9% pour  $\sigma_{xx}$ , 0,9% pour  $\sigma_{yy}$ , puis 0,8 % sur  $\sigma_{xy}$ .

À noter que pour la même configuration, mais avec un maillage deux fois plus fin, c'est-à-dire de 125 nm, l'erreur est divisée par trois environ.

Les calculs présentés ci-après sont réalisés pour trois faisceaux.

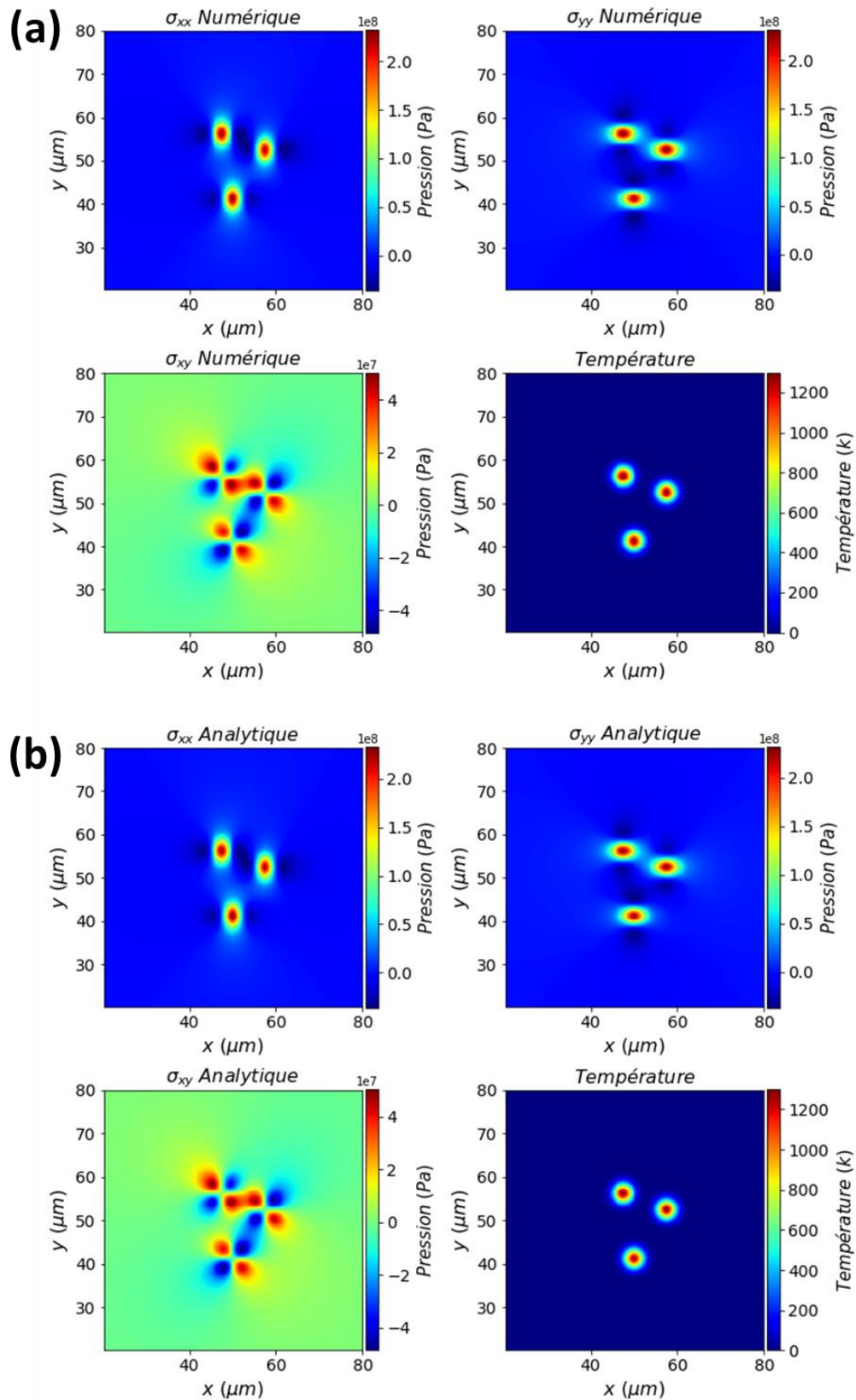


Figure 117. Calcul des contraintes pour une distribution de température avec trois faisceaux dans une repère  $(x, y)$ . En (a) le calcul numérique et en (b) le calcul analytique pour un maillage de 250 nm.

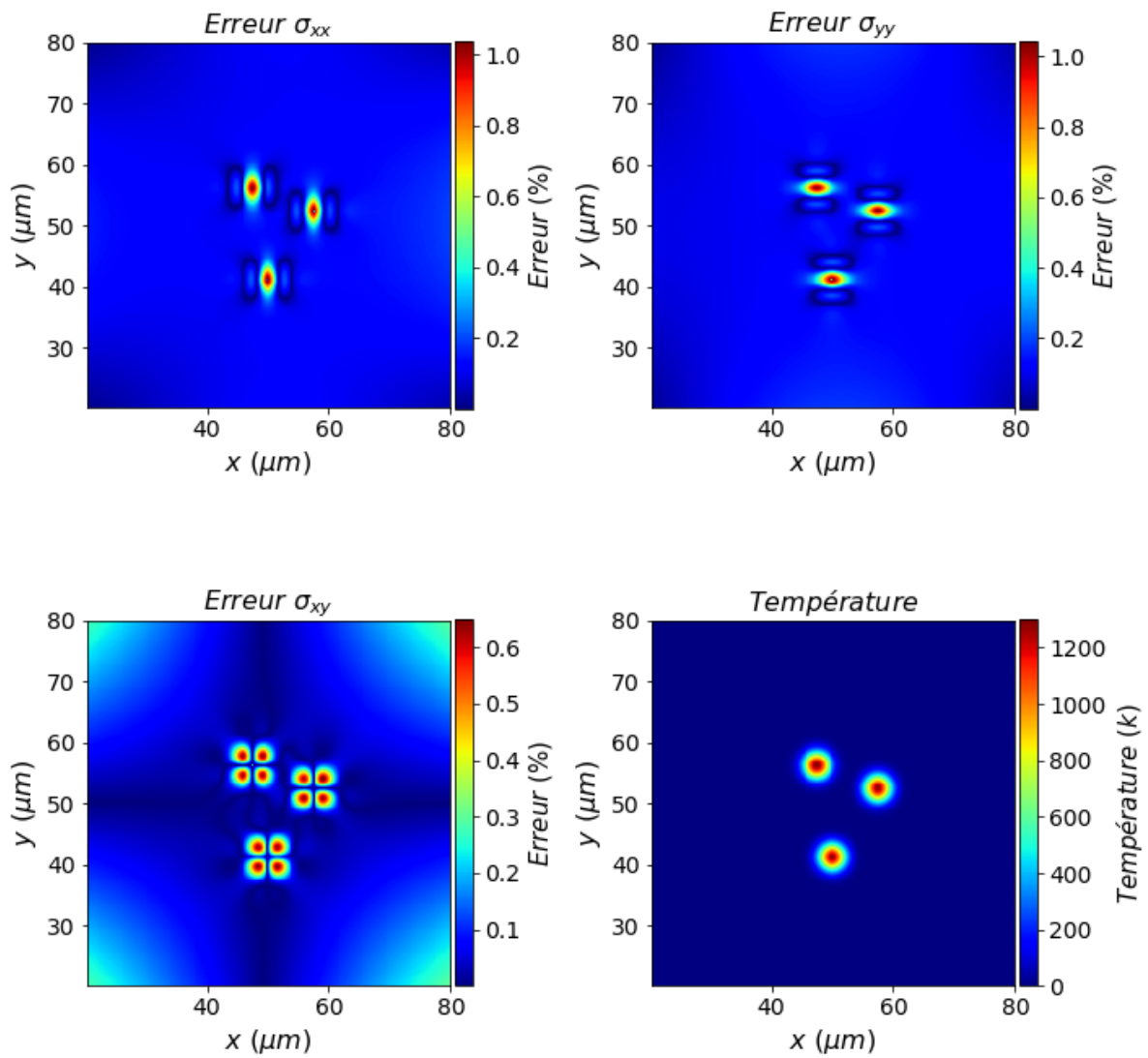


Figure 118. Erreur relative du calcul numérique pour trois faisceaux et un maillage de 250 nm. Au plus fort l'erreur est de 1% sur le calcul des contraintes  $\sigma_{xx}$ , et  $\sigma_{yy}$ , puis 0,6 % sur  $\sigma_{xy}$ .

À noter que pour la même configuration, mais avec un maillage deux fois plus fin c'est-à-dire de 125 nm, l'erreur est divisée par trois environ pour  $\sigma_{xx}$ , et  $\sigma_{yy}$ , puis par deux pour  $\sigma_{xy}$ .



## RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

1. "Laboratoire CELIA," <https://www.celia.u-bordeaux.fr/presentation/>.
2. "ALPhANOV," <https://www.alphanov.com/>.
3. L. A. Hof and J. A. Ziki, "Micro-hole drilling on glass substrates-A review," *Micromachines* **8**, 1–23 (2017).
4. D. Homoelle, S. Wielandy, A. L. Gaeta, N. F. Borrelli, and C. Smith, "Infrared photosensitivity in silica glasses exposed to femtosecond laser pulses," *Opt. Lett.* **24**, 1311 (1999).
5. S. Juodkazis, S. Matsuo, H. Misawa, V. Mizeikis, A. Marcinkevicius, H.-B. Sun, Y. Tokuda, M. Takahashi, T. Yoko, and J. Nishii, "Application of femtosecond laser pulses for microfabrication of transparent media," *Appl. Surf. Sci.* **197–198**, 705–709 (2002).
6. M. H. Hong, B. Luk'yanchuk, S. M. Huang, T. S. Ong, L. H. Van, and T. C. Chong, "Femtosecond laser application for high capacity optical data storage," *Appl. Phys. A Mater. Sci. Process.* **79**, 791–794 (2004).
7. E. N. Glezer, M. Milosavljevic, L. Huang, R. J. Finlay, T.-H. Her, J. P. Callan, and E. Mazur, "Three-dimensional optical storage inside transparent materials: errata," *Opt. Lett.* **22**, 422 (1997).
8. A. Marcinkevičius, S. Juodkazis, M. Watanabe, M. Miwa, S. Matsuo, H. Misawa, and J. Nishii, "Femtosecond laser-assisted three-dimensional microfabrication in silica," *Opt. Lett.* **26**, 277 (2001).
9. K. Minoshima, A. M. Kowalevycz, I. Hartl, E. P. Ippen, and J. G. Fujimoto, "Photonic device fabrication in glass by use of nonlinear materials processing with a femtosecond laser oscillator," *Opt. Lett.* **26**, 1516 (2001).
10. C. B. Schaffer, A. Brodeur, J. F. García, and E. Mazur, "Micromachining bulk glass by use of femtosecond laser pulses with nanojoule energy," *Opt. Lett.* **26**, 93 (2001).
11. K. M. Davis, K. Miura, N. Sugimoto, and K. Hirao, "Writing waveguides in glass with a femtosecond laser," *Opt. Lett.* **21**, 1729 (1996).
12. K. Minoshima, A. Kowalevycz, E. Ippen, and J. Fujimoto, "Fabrication of coupled mode photonic devices in glass by nonlinear femtosecond laser materials processing," *Opt. Express* **10**, 645 (2002).
13. H. Desrus, C. Poulin, V. Germes, B. Chassagne, S. Hocquet, Q. Maouhoub, A. Morisset, R. Kling, and F. Deloison, "Fabrication of Fresnel zone plate and phase mask by index change in the bulk of polymers with femtosecond laser pulses," *Int. Congr. Appl. Lasers Electro-Optics* **125**, 125–133 (2014).
14. W. Watanabe, D. Kuroda, K. Itoh, and J. Nishii, "Fabrication of Fresnel zone plate embedded in silica glass by femtosecond laser pulses," *Opt. Express* **10**, 978 (2002).
15. K. Mishchik, K. Gaudfrin, and J. Lopez, "Drilling of through holes in sapphire using femtosecond laser pulses," *J. Laser Micro Nanoeng.* **12**, 321–324 (2017).
16. K. Mishchik, R. Beuton, O. Dematteo Caulier, S. Skupin, B. Chimier, G. Duchateau, B.



- Chassagne, R. Kling, C. Hönninger, E. Mottay, and J. Lopez, "Improved laser glass cutting by spatio-temporal control of energy deposition using bursts of femtosecond pulses," *Opt. Express* **25**, 33271 (2017).
17. L. . Keldysh, "Ionization in the Field of a Strong Electromagnetic Wave," *J. Exp. Theor. Phys.* **47**, 1965 (1965).
  18. B. Rethfeld, "Unified Model for the Free-Electron Avalanche in Laser-Irradiated Dielectrics," *Phys. Rev. Lett.* **92**, 187401 (2004).
  19. E. G. Gamaly, "The physics of ultra-short laser interaction with solids at non-relativistic intensities," *Phys. Rep.* **508**, 91–243 (2011).
  20. E. Mazur and R. Gattass, "A round-up of recent papers in the field of photonics published by the physical sciences division of the Nature Publishing Group.," *Nat. Photonics* **2**, 251–251 (2008).
  21. P. K. Velpula, M. K. Bhuyan, C. Mauclair, J.-P. Colombier, and R. Stoian, "Role of free carriers excited by ultrafast Bessel beams for submicron structuring applications," *Opt. Eng.* **53**, 076108 (2014).
  22. K. Mishchik, B. Chassagne, C. Javaux-Léger, C. Hönninger, E. Mottay, R. Kling, and J. Lopez, "Dash line glass- and sapphire-cutting with high power USP laser," in *Frontiers in Ultrafast Optics: Biomedical, Scientific, and Industrial Applications XVI*, A. Heisterkamp, P. R. Herman, M. Meunier, and S. Nolte, eds. (2016), Vol. 9740, p. 97400W.
  23. F. Courvoisier, J. Zhang, M. K. Bhuyan, M. Jacquot, and J. M. Dudley, "Applications of femtosecond Bessel beams to laser ablation," *Appl. Phys. A* **112**, 29–34 (2013).
  24. M. K. Bhuyan, F. Courvoisier, P. A. Lacourt, M. Jacquot, R. Salut, L. Furfaro, and J. M. Dudley, "High aspect ratio nanochannel machining using single shot femtosecond Bessel beams," *Appl. Phys. Lett.* **97**, 081102 (2010).
  25. R. Stoian, M. Boyle, A. Thoss, A. Rosenfeld, G. Korn, I. V. Hertel, and E. E. B. Campbell, "Laser ablation of dielectrics with temporally shaped femtosecond pulses," *Appl. Phys. Lett.* **80**, 353–355 (2002).
  26. J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, M. Galvan-Sosa, A. Ruiz de la Cruz, and J. Solis, "Surface structuring of fused silica with asymmetric femtosecond laser pulse bursts," *J. Opt. Soc. Am. B* **30**, 1352 (2013).
  27. Y. P. Deng, X. H. Xie, H. Xiong, Y. X. Leng, C. F. Cheng, H. H. Lu, R. X. Li, and Z. Z. Xu, "Optical breakdown for silica and silicon with double femtosecond laser pulses," *Opt. Express* **13**, 3096 (2005).
  28. M. Lebugle, N. Sanner, N. Varkentina, M. Sentis, and O. Utéza, "Dynamics of femtosecond laser absorption of fused silica in the ablation regime," *J. Appl. Phys.* **116**, 063105 (2014).
  29. M. Li, S. Menon, J. P. Nibarger, and G. N. Gibson, "Ultrafast electron dynamics in femtosecond optical breakdown of dielectrics," *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2394–2397 (1999).
  30. I. H. Chowdhury, A. Q. Wu, X. Xu, and A. M. Weiner, "Ultra-fast laser absorption and ablation dynamics in wide-band-gap dielectrics," *Appl. Phys. A Mater. Sci. Process.* **81**, 1627–1632 (2005).
  31. M. Gedvilas, J. Mikšys, J. Berzinš, V. Stankevič, and G. Račiukaitis, "Multi-photon absorption enhancement by dual-wavelength double-pulse laser irradiation for efficient dicing of sapphire wafers," *Sci. Rep.* **7**, 5218 (2017).

32. S. Reyné, G. Duchateau, L. Hallo, J. Y. Natoli, and L. Lamaignère, "Multi-wavelength study of nanosecond laser-induced bulk damage morphology in KDP crystals," *Appl. Phys. A* **119**, 1317–1326 (2015).
33. D. J. Little, M. Ams, P. Dekker, G. D. Marshall, J. M. Dawes, and M. J. Withford, "Femtosecond laser modification of fused silica: the effect of writing polarization on Si-O ring structure.," *Opt. Express* **16**, 20029–37 (2008).
34. L. Ye, W. Perrie, O. J. Allegre, Y. Jin, Z. Kuang, P. J. Scully, E. Fearon, D. Eckford, S. P. Edwardson, and G. Dearden, "NUV femtosecond laser inscription of volume Bragg gratings in poly(methyl)methacrylate with linear and circular polarizations," *Laser Phys.* **23**, 126004 (2013).
35. J.-M. Guay, A. Villafranca, F. Baset, K. Popov, L. Ramunno, and V. R. Bhardwaj, "Polarization-dependent femtosecond laser ablation of poly-methyl methacrylate," *New J. Phys.* **14**, 085010 (2012).
36. V. V. Temnov, K. Sokolowski-Tinten, P. Zhou, A. El-Khamhawy, and D. von der Linde, "Multiphoton ionization in dielectrics: Competition of circular and linear polarization," 2007 *Conf. Lasers Electro-Optics* **237403**, (2007).
37. K. Sugioka, M. Iida, H. Takai, and K. Micorikawa, "Efficient microwelding of glass substrates by ultrafast laser irradiation using a double-pulse train," *Opt. Lett.* **36**, 2734 (2011).
38. K. Sugioka, S. Wu, and K. Midorikawa, "Double-pulse irradiation of ultrafast laser for high-efficiency glass microwelding," *Laser Appl. Microelectron. Optoelectron. Manuf. XVIII* **8607**, 86070G (2013).
39. N. W. Ashcroft, N. D. Mermin, and R. Smoluchowski, "Solid State Physics," *Phys. Today* **30**, 61–65 (1977).
40. M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, Z. Cheng, C. Spielmann, G. Mourou, and F. Kautek, "Femtosecond optical breakdown in dielectrics," *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4076–4079 (1998).
41. A. Brodeur and S. L. Chin, "Band-Gap Dependence of the Ultrafast White-Light Continuum," *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4406–4409 (1998).
42. J. Shan, F. Wang, E. Knoesel, M. Bonn, and T. F. Heinz, "Measurement of the Frequency-Dependent Conductivity in Sapphire," *Phys. Rev. Lett.* **90**, 247401 (2003).
43. J. Olivier and R. Poirier, "Electronic structure of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> from electron energy loss spectroscopy," *Surf. Sci.* **105**, 347–356 (1981).
44. R. Lindner, M. Reichling, R. T. Williams, and E. Matthias, "Femtosecond laser pulse excitation of electrons and excitons in CaF<sub>2</sub> and SrF<sub>2</sub>," *J. Phys. Condens. Matter* **13**, 2339–2346 (2001).
45. J. Zarzycki, *Les Verres et l'état Vitreux*, Masson (1982).
46. J.-J. Videau and G. Le Flem, "Les verres phosphates," ICMCB (2010).
47. V. Dupuis, "Etats de la matiere : Verres et transition vitreuse," cours (2009).
48. B. Rethfeld, "Free-electron generation in laser-irradiated dielectrics," *Phys. Rev. B* **73**, 035101 (2006).
49. S. C. Jones, P. Braunlich, R. T. Casper, X.-A. Shen, and P. Kelly, "Recent Progress On Laser-Induced Modifications And Intrinsic Bulk Damage Of Wide-Gap Optical Materials," *Opt. Eng.* **28**, 281039 (1989).

50. A. V. Mitrofanov, A. J. Verhoef, E. E. Serebryannikov, J. Lumeau, L. Glebov, A. M. Zheltikov, and A. Baltuška, "Optical Detection of Attosecond Ionization Induced by a Few-Cycle Laser Field in a Transparent Dielectric Material," *Phys. Rev. Lett.* **106**, 147401 (2011).
51. E. E. Serebryannikov and A. M. Zheltikov, "Quantum and Semiclassical Physics behind Ultrafast Optical Nonlinearity in the Midinfrared: The Role of Ionization Dynamics within the Field Half Cycle," *Phys. Rev. Lett.* **113**, 043901 (2014).
52. M. Gertsvolf, M. Spanner, D. M. Rayner, and P. B. Corkum, "Demonstration of attosecond ionization dynamics inside transparent solids," *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **43**, 131002 (2010).
53. M. Abramowitz and S. Irene, "Handbook of Functions," *Phys. Today* **17**, 92–92 (1964).
54. N. S. Shcheblanov, M. E. Povarnitsyn, P. N. Terekhin, S. Guizard, and A. Couairon, "Nonlinear photoionization of transparent solids: A nonperturbative theory obeying selection rules," *Phys. Rev. A* **96**, 063410 (2017).
55. H. X. Deng, X. Xiang, W. G. Zheng, X. D. Yuan, S. Y. Wu, X. D. Jiang, F. Gao, X. T. Zu, and K. Sun, "Theory of absorption rate of carriers in fused silica under intense laser irradiation," *J. Appl. Phys.* **108**, 103116 (2010).
56. M. D. Perry, B. C. Stuart, P. S. Banks, M. D. Feit, V. Yanovsky, and A. M. Rubenchik, "Ultrashort-pulse laser machining of dielectric materials," *J. Appl. Phys.* **85**, 6803–6810 (1999).
57. D. Arnold and E. Cartier, "Theory of laser-induced free-electron heating and impact ionization in wide-band-gap solids," *Phys. Rev. B* **46**, 15102–15115 (1992).
58. B. Stuart, M. Feit, S. Herman, A. Rubenchik, B. Shore, and M. Perry, "Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics," *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* **53**, 1749–1761 (1996).
59. B. C. Stuart, M. D. Feit, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, and M. D. Perry, "Laser-Induced Damage in Dielectrics with Nanosecond to Subpicosecond Pulses," *Phys. Rev. Lett.* **74**, 2248–2251 (1995).
60. T. Q. Jia, H. X. Chen, M. Huang, F. L. Zhao, X. X. Li, S. Z. Xu, H. Y. Sun, D. H. Feng, C. B. Li, X. F. Wang, R. X. Li, Z. Z. Xu, X. K. He, and H. Kuroda, "Ultraviolet-infrared femtosecond laser-induced damage in fused silica and CaF<sub>2</sub> crystals," *Phys. Rev. B* **73**, 054105 (2006).
61. A. Kaiser and B. Rethfeld, "Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses," *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.* **61**, 11437–11450 (2000).
62. M. Lebugle, N. Sanner, N. Varkentina, M. Sentis, and O. Utéza, "Dynamics of femtosecond laser absorption of fused silica in the ablation regime," *J. Appl. Phys.* **116**, 063105 (2014).
63. E. G. Gamaly, "The physics of ultra-short laser interaction with solids at non-relativistic intensities," *Phys. Rep.* **508**, 91–243 (2011).
64. D. Arnold, E. Cartier, and D. J. DiMaria, "Theory of high-field electron transport and impact ionization in silicon dioxide," *Phys. Rev. B* **49**, 10278–10297 (1994).
65. P. Balling and J. Schou, "Femtosecond-laser ablation dynamics of dielectrics: basics and applications for thin films," *Reports Prog. Phys.* **76**, 036502 (2013).
66. P. Martin, S. Guizard, P. Daguzan, G. Petite, P. D'Oliveira, P. Meynadier, and M. Perdrix, "Subpicosecond study of carrier trapping dynamics in wide-band-gap crystals," *Phys. Rev. B -*

- Condens. Matter Mater. Phys. **55**, 5799–5810 (1997).
67. P. Audebert, P. Daguzan, A. Dos Santos, J. C. Gauthier, J. P. Geindre, S. Guizard, G. Hamoniaux, K. Krastev, P. Martin, G. Petite, and A. Antonetti, "Space-time observation of an electron gas in SiO<sub>2</sub>," Phys. Rev. Lett. **73**, 1990–1993 (1994).
  68. S. Guizard, P. Martin, P. Daguzan, G. Petite, P. Audebert, J. P. Geindre, A. Dos Santos, and A. Antonetti, "Contrasted Behaviour of an Electron Gas in MgO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and SiO<sub>2</sub>," Europhys. Lett. **29**, 401–406 (1995).
  69. P. N. Saeta and B. I. Greene, "Primary relaxation processes at the band edge of SiO<sub>2</sub>," Phys. Rev. Lett. **70**, 3588–3591 (1993).
  70. D. Grojo, M. Gertszov, S. Lei, T. Barillot, D. M. Rayner, and P. B. Corkum, "Exciton-seeded multiphoton ionization in bulk SiO<sub>2</sub>," Phys. Rev. B **81**, 212301 (2010).
  71. F. Quéré, S. Guizard, P. Martin, G. Petite, O. Gobert, P. Meynadier, and M. Perdrix, "Ultrafast carrier dynamics in laser-excited materials: Subpicosecond optical studies," Appl. Phys. B Lasers Opt. **68**, 459–463 (1999).
  72. R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Academic P (1981).
  73. A. Kudlinski, *Techniques de l'ingénieur, La Révolution Du Laser Blanc Sources Supercontinuum à Fibre Optique La Révolution Du Laser Blanc* (2013).
  74. C. M. Clayton, *Applications of Nonlinear Optics* (1993).
  75. R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Academic P (Academic Press, 1981).
  76. S. Couris, M. Renard, O. Faucher, B. Lavorel, R. Chaux, E. Koudoumas, and X. Michaut, "An experimental investigation of the nonlinear refractive index ( $n_2$ ) of carbon disulfide and toluene by spectral shearing interferometry and z-scan techniques," Chem. Phys. Lett. **369**, 318–324 (2003).
  77. A. Major, F. Yoshino, I. Nikolakakos, J. S. Aitchison, and P. W. E. Smith, "Dispersion of the nonlinear refractive index in sapphire," Opt. Lett. **29**, 602 (2004).
  78. B. Momgaudis, S. Guizard, A. Bilde, and A. Melninkaitis, "Nonlinear refractive index measurements using time-resolved digital holography," Opt. Lett. **43**, 304 (2018).
  79. W. Gawelda, D. Puerto, J. Siegel, A. Ferrer, A. Ruiz de la Cruz, H. Fernández, and J. Solis, "Ultrafast imaging of transient electronic plasmas produced in conditions of femtosecond waveguide writing in dielectrics," Appl. Phys. Lett. **93**, 121109 (2008).
  80. S. Tzortzakis, L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, A. Couairon, and L. Bergé, "Self-Guided Propagation of Ultrashort IR Laser Pulses in Fused Silica," Phys. Rev. Lett. **87**, 213902 (2001).
  81. L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Electrodynamics of Continuous Media*, Pergamon P (1984).
  82. D. Arnold, E. Cartier, and D. J. DiMaria, "Acoustic-phonon runaway and impact ionization by hot electrons in silicon dioxide," Phys. Rev. B **45**, 1477–1480 (1992).
  83. X. Mao, S. S. Mao, and R. E. Russo, "Imaging femtosecond laser-induced electronic excitation in glass," Appl. Phys. Lett. **82**, 697–699 (2003).
  84. L. Sudrie, A. Couairon, M. Franco, B. Lamouroux, B. Prade, S. Tzortzakis, and A. Mysyrowicz, "Femtosecond Laser-Induced Damage and Filamentary Propagation in Fused Silica," Phys. Rev. Lett. **89**, 186601 (2002).

85. A. Q. Wu, I. H. Chowdhury, and X. Xu, "Femtosecond laser absorption in fused silica: Numerical and experimental investigation," *Phys. Rev. B* **72**, 085128 (2005).
86. B. Max and E. Wolf, "Principles of Optics (Born & Wolf, TMM Reference).pdf," P40-41 (1970).
87. B. H. Christensen and P. Balling, "Modeling ultrashort-pulse laser ablation of dielectric materials," *Phys. Rev. B* **79**, 155424 (2009).
88. R. Beuton, B. Chimier, J. Breil, D. Hébert, P.-H. Maire, and G. Duchateau, "Thermo-elasto-plastic simulations of femtosecond laser-induced structural modifications: Application to cavity formation in fused silica," *J. Appl. Phys.* **122**, 203104 (2017).
89. J. Zarzycki, "Propriétés mécaniques des verres," *Rev. Phys. Appliquée* **12**, 789–796 (1977).
90. L. V. T. M.I. Kaganov, I.M. Lifshitz, "Relaxation between Electrons and the Crystalline Lattice," *Jetp* **4**, 173 (1955).
91. L. Gallais, "Endommagement laser des matériaux et composants optiques," CNRS (2017).
92. L. D. Landau, E. M. Lifshitz, J. B. Sykes, W. H. Reid, and E. H. Dill, "Theory of Elasticity: Vol. 7 of Course of Theoretical Physics," *Phys. Today* **13**, 44–46 (1960).
93. J. Charmet, *Mécanique Du Solide et Des Matériaux*, Cours ESPC (1997).
94. J. Zarzycki, "Propriétés mécaniques des verres," *Rev. Phys. Appliquée* **12**, 789–796 (1977).
95. J. F. Ganghoffer, *Continuum Mechanics*, Springer (2018).
96. R. Beuton, "Modélisation de la structuration d'un matériau diélectrique irradié par une impulsion laser femtoseconde," Bordeaux University (2018).
97. J. Fanchon, *Guide de Mécanique*, Nathan (2001).
98. R. Gourhant, *Guide Du Calcul En Mécanique*, Hachette (2003).
99. L. V Keldysh, "Kinetic Theory of Impact Ionization in Semiconductors," *J. Exptl. Theor. Phys.* **37**, 713–727 (1960).
100. E. G. Gamaly, A. V. Rode, B. Luther-Davies, and V. T. Tikhonchuk, "Ablation of solids by femtosecond lasers: Ablation mechanism and ablation thresholds for metals and dielectrics," *Phys. Plasmas* **9**, 949 (2002).
101. S. S. Mao, F. Quéré, S. Guizard, X. Mao, R. E. Russo, G. Petite, and P. Martin, "Dynamics of femtosecond laser interactions with dielectrics," *Appl. Phys. A Mater. Sci. Process.* **79**, 1695–1709 (2004).
102. R. Stoian, D. Ashkenasi, A. Rosenfeld, and E. E. B. Campbell, "Coulomb explosion in ultrashort pulsed laser ablation of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>," *Phys. Rev. B* **62**, 13167–13173 (2000).
103. R. Stoian, A. Rosenfeld, D. Ashkenasi, I. V. Hertel, N. M. Bulgakova, and E. E. B. Campbell, "Surface Charging and Impulsive Ion Ejection during Ultrashort Pulsed Laser Ablation," *Phys. Rev. Lett.* **88**, 097603 (2002).
104. W. Rudolph, L. A. Emmert, D. Nguyen, C. Karras, Z. Sun, and R. Weber, "Subpicosecond laser breakdown in optical thin films," in *Pacific Rim Laser Damage 2011: Optical Materials for High Power Lasers*, J. Shao, ed. (2011), Vol. 8206, p. 82060D.
105. L. Jiang and H. L. Tsai, "Energy transport and material removal in wide bandgap materials by a femtosecond laser pulse," *Int. J. Heat Mass Transf.* **48**, 487–499 (2005).

106. M. D. Feit, A. M. Komashko, and A. M. Rubenchik, "Ultra-short pulse laser interaction with transparent dielectrics," *Appl. Phys. A* **79**, 1657–1661 (2004).
107. S. Guizard, A. Semerok, J. Gaudin, M. Hashida, P. Martin, and F. Quéré, "Femtosecond laser ablation of transparent dielectrics: measurement and modelisation of crater profiles," *Appl. Surf. Sci.* **186**, 364–368 (2002).
108. J. R. Peñano, P. Sprangle, B. Hafizi, W. Manheimer, and A. Zigler, "Transmission of intense femtosecond laser pulses into dielectrics," *Phys. Rev. E* **72**, 036412 (2005).
109. B. Chimier, O. Utéza, N. Sanner, M. Sentis, T. Itina, P. Lassonde, F. Légaré, F. Vidal, and J. C. Kieffer, "Damage and ablation thresholds of fused-silica in femtosecond regime," *Phys. Rev. B* **84**, 094104 (2011).
110. E. G. Gamaly, A. V. Rode, V. T. Tikhonchuk, and B. Luther-Davies, "Electrostatic mechanism of ablation by femtosecond lasers," *Appl. Surf. Sci.* **197–198**, 699–704 (2002).
111. B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, and M. D. Perry, "Optical ablation by high-power short-pulse lasers," *J. Opt. Soc. Am. B* **13**, 459 (1996).
112. A. C. Tien, S. Backus, H. Kapteyn, M. Murnane, and G. Mourou, "Short-pulse laser damage in transparent materials as a function of pulse duration," *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3883–3886 (1999).
113. M. LENZNER, "Femtosecond laser-induced damage of dielectrics," *Int. J. Mod. Phys. B* **13**, 1559–1578 (1999).
114. O. Utéza, N. Sanner, B. Chimier, A. Brocas, N. Varkentina, M. Sentis, P. Lassonde, F. Légaré, and J. C. Kieffer, "Control of material removal of fused silica with single pulses of few optical cycles to sub-picosecond duration," *Appl. Phys. A* **105**, 131–141 (2011).
115. O. Utéza, N. Sanner, B. Chimier, M. Sentis, P. Lassonde, F. Légaré, and J. C. Kieffer, "Surface ablation of dielectrics with sub-10 fs to 300 fs laser pulses: Crater depth and diameter, and efficiency as a function of laser intensity," *J. Laser Micro Nanoeng.* **5**, 238–241 (2010).
116. C. Pasquier, M. Sentis, O. Utéza, and N. Sanner, "Predictable surface ablation of dielectrics with few-cycle laser pulse even beyond air ionization," *Appl. Phys. Lett.* **109**, 051102 (2016).
117. L. Haahr-Lillevang, K. Wædegaard, D. B. Sandkamm, A. Mouskeftaras, S. Guizard, and P. Balling, "Short-pulse laser excitation of quartz: experiments and modelling of transient optical properties and ablation," *Appl. Phys. A Mater. Sci. Process.* **120**, 1221–1227 (2015).
118. K. Wædegaard, M. Frislev, and P. Balling, "Femtosecond laser excitation of dielectric materials: experiments and modeling of optical properties and ablation depths," *Appl. Phys. A* **110**, 601–605 (2013).
119. X. Jia and X. Zhao, "Numerical investigation of ultrashort laser interaction with dielectric materials based on a plasma-temperature combined model," *J. Manuf. Process.* **28**, 508–514 (2017).
120. L. Jiang and H. L. Tsai, "Prediction of crater shape in femtosecond laser ablation of dielectrics," *J. Phys. D. Appl. Phys.* **37**, 1492–1496 (2004).
121. J. Krüger and W. Kautek, "The Femtosecond Pulse Laser: a New Tool for Micromachining," *Laser Phys.* **9**, 30–40 (1999).
122. J. Hernandez-Rueda, J. Clarijs, D. van Oosten, and D. M. Krol, "The influence of femtosecond laser wavelength on waveguide fabrication inside fused silica," *Appl. Phys. Lett.* **110**, 161109 (2017).

123. J. Krüger and W. Kautek, "Femtosecond-pulse visible laser processing of transparent materials," *Appl. Surf. Sci.* **96–98**, 430–438 (1996).
124. W. Kautek, J. Krüger, M. Lenzner, S. Sartania, C. Spielmann, and F. Krausz, "Laser ablation of dielectrics with pulse durations between 20 fs and 3 ps," *Appl. Phys. Lett.* **69**, 3146–3148 (1996).
125. E. G. Gamaly, A. V. Rode, O. Uteza, V. Kolev, B. Luther-Davies, T. Bauer, J. Koch, F. Korte, and B. N. Chichkov, "Control over a phase state of the laser plume ablated by femtosecond laser: Spatial pulse shaping," *J. Appl. Phys.* **95**, 2250–2257 (2004).
126. I. Ouadghiri-Idrissi, J. M. Dudley, and F. Courvoisier, "Controlling nonlinear instabilities in Bessel beams through longitudinal intensity shaping," *Opt. Lett.* **42**, 3785 (2017).
127. R. M. Herman and T. A. Wiggins, "Production and uses of diffractionless beams," *J. Opt. Soc. Am. A* **8**, 932 (1991).
128. F. Courvoisier, R. Stoian, and A. Couairon, "[INVITED] Ultrafast laser micro- and nano-processing with nondiffracting and curved beams," *Opt. Laser Technol.* **80**, 125–137 (2016).
129. K. Mishchik, J. Lopez, O. D. Caulier, G. Duchateau, B. Chassagne, R. Kling, C. Hoenninger, and E. Mottay, "Laser glass cutting by spatio-temporal control of energy deposition using bursts of femtosecond pulses," in *Conference on Lasers and Electro-Optics (OSA, 2017)*, Vol. 2017-Janua, p. ATu4C.3.
130. A. Monmayrant, S. Weber, and B. Chatel, "A newcomer's guide to ultrashort pulse shaping and characterization," *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **43**, 103001 (2010).
131. A. J. Nathan and A. Scobell, *Laser Precision Microfabrication*, Springer Series in Materials Science (Springer Berlin Heidelberg, 2010), Vol. 135.
132. R. Stoian, J. P. Colombier, C. Mauclair, G. Cheng, M. K. Bhuyan, P. K. Velpula, and P. Srisungsitthisunti, "Spatial and temporal laser pulse design for material processing on ultrafast scales," *Appl. Phys. A Mater. Sci. Process.* **114**, 119–127 (2014).
133. I. M. Burakov, N. M. Bulgakova, R. Stoian, A. Rosenfeld, and I. V. Hertel, "Theoretical investigations of material modification using temporally shaped femtosecond laser pulses," *Appl. Phys. A Mater. Sci. Process.* **81**, 1639–1645 (2005).
134. R. Stoian, M. Boyle, A. Thoss, A. Rosenfeld, G. Korn, and I. V. Hertel, "Dynamic temporal pulse shaping in advanced ultrafast laser material processing," *Appl. Phys. A Mater. Sci. Process.* **77**, 265–269 (2003).
135. J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, D. Puerto, M. Galvan-Sosa, W. Gawelda, and J. Solis, "Ad-hoc design of temporally shaped fs laser pulses based on plasma dynamics for deep ablation in fused silica," *Appl. Phys. A* **112**, 185–189 (2013).
136. J. R. Gulley and T. E. Lanier, "Model for ultrashort laser pulse-induced ionization dynamics in transparent solids," *Phys. Rev. B* **90**, 155119 (2014).
137. I. H. Chowdhury, X. Xu, and A. M. Weiner, "Ultrafast double-pulse ablation of fused silica," *Appl. Phys. Lett.* **86**, 151110 (2005).
138. X. Zhao and Y. C. Shin, "Ablation enhancement of silicon by ultrashort double-pulse laser ablation," *Appl. Phys. Lett.* **105**, 111907 (2014).
139. B. Zhou, A. Rahaman, X. Du, A. Kar, M. J. Soileau, and X. Yu, "Laser processing of dielectrics using spatiotemporally tuned ultrashort pulses," *J. Laser Appl.* **32**, 022041 (2020).

140. X. Yu, Q. Bian, B. Zhao, Z. Chang, P. B. Corkum, and S. Lei, "Near-infrared femtosecond laser machining initiated by ultraviolet multiphoton ionization," *Appl. Phys. Lett.* **102**, 101111 (2013).
141. Y. Yuan, L. Jiang, X. Li, C. Wang, and Y. Lu, "Adjustment of ablation shapes and subwavelength ripples based on electron dynamics control by designing femtosecond laser pulse trains," *J. Appl. Phys.* **112**, 103103 (2012).
142. A. Mouskeftaras, S. Guizard, N. Fedorov, and S. Klimentov, "Mechanisms of femtosecond laser ablation of dielectrics revealed by double pump-probe experiment," *Appl. Phys. A Mater. Sci. Process.* **110**, 709–715 (2013).
143. F. Théberge and S. L. Chin, "Enhanced ablation of silica by the superposition of femtosecond and nanosecond laser pulses," *Appl. Phys. A Mater. Sci. Process.* **80**, 1505–1510 (2005).
144. I. H. Chowdhury, X. Xu, and A. M. Weiner, "Ultrafast two-color ablation of fused silica," *Appl. Phys. A* **83**, 49–52 (2006).
145. S. Guizard, S. Klimentov, A. Mouskeftaras, N. Fedorov, G. Geoffroy, and G. Vilmart, "Ultrafast Breakdown of dielectrics: Energy absorption mechanisms investigated by double pulse experiments," *Appl. Surf. Sci.* **336**, 206–211 (2015).
146. L. Jiang, A. D. Wang, B. Li, T. H. Cui, and Y. F. Lu, "Electrons dynamics control by shaping femtosecond laser pulses in micro/nanofabrication: Modeling, method, measurement and application," *Light Sci. Appl.* **7**, 17134–17134 (2018).
147. S. Höhm, M. Herzlieb, A. Rosenfeld, J. Krüger, and J. Bonse, "Formation of laser-induced periodic surface structures on fused silica upon two-color double-pulse irradiation," *Appl. Phys. Lett.* **103**, 254101 (2013).
148. S. Guizard, N. Fedorov, A. Mouskeftaras, S. Klimentov, and C. Phipps, "Femtosecond Laser Ablation of Dielectrics: Experimental Studies of Fundamental Processes," *AIP Conf. Proc.* **1278**, 336–346 (2010).
149. F. V. Potemkin, B. G. Bravy, Y. I. Besudnova, E. I. Mareev, V. M. Starostin, V. T. Platonenko, and V. M. Gordienko, "Overcritical plasma ignition and diagnostics from oncoming interaction of two color low energy tightly focused femtosecond laser pulses inside fused silica," *Laser Phys. Lett.* **13**, 045402 (2016).
150. F. V. Potemkin, E. I. Mareev, Y. I. Besudnova, V. T. Platonenko, B. G. Bravy, and V. M. Gordienko, "Enhancing nonlinear energy deposition into transparent solids with an elliptically polarized and mid-IR heating laser pulse under two-color femtosecond impact," *Laser Phys. Lett.* **14**, 065403 (2017).
151. A. Tamura, T. Nishio, H. Suhara, and N. Nagayama, "Double pulse explosion drilling of transparent materials," *Laser-based Micro- Nanoprocessing XII 105200M* (2018).
152. B. Zhou, A. Kar, M. J. Soileau, and X. Yu, "Reducing feature size in femtosecond laser ablation of fused silica by exciton-seeded photoionization," *Opt. Lett.* **45**, 1994 (2020).
153. L. Jiang, P. Liu, X. Yan, N. Leng, C. Xu, H. Xiao, and Y. Lu, "High-throughput rear-surface drilling of microchannels in glass based on electron dynamics control using femtosecond pulse trains," *Opt. Lett.* **37**, 2781 (2012).
154. C. D. Hodgman and S. C. Lind, "Handbook of Chemistry and Physics.," *J. Phys. Colloid Chem.* **53**, 1139–1139 (1949).
155. K. Gaudfrin, J. Lopez, G. Duchateau, R. Kling, and K. Mishchik, "Fused silica ablation by double



- femtosecond laser pulses with variable delays," *Laser Appl. Microelectron. Optoelectron. Manuf.* XXIV 109050H (2019).
156. E. G. Gamaly, A. V. Rode, B. Luther-Davies, and V. T. Tikhonchuk, "Ablation of solids by femtosecond lasers: Ablation mechanism and ablation thresholds for metals and dielectrics," *Phys. Plasmas* **9**, 949–957 (2002).
  157. J. Neauport, P. Cormont, L. Lamaignère, C. Ambard, F. Pilon, and H. Bercegol, "Concerning the impact of polishing induced contamination of fused silica optics on the laser-induced damage density at 351 nm," *Opt. Commun.* **281**, 3802–3805 (2008).
  158. J. Neauport, L. Lamaignere, H. Bercegol, F. Pilon, and J.-C. Birolleau, "Polishing-induced contamination of fused silica optics and laser induced damage density at 351 nm," *Opt. Express* **13**, 10163 (2006).
  159. P. E. Miller, J. D. Bude, T. I. Suratwala, N. Shen, T. A. Laurence, W. A. Steele, J. Menapace, M. D. Feit, and L. L. Wong, "Fracture-induced subbandgap absorption as a precursor to optical damage on fused silica surfaces," *Opt. Lett.* **35**, 2702 (2010).
  160. P. E. Miller, T. I. Suratwala, J. D. Bude, T. A. Laurence, N. Shen, W. A. Steele, M. D. Feit, J. A. Menapace, and L. L. Wong, "Laser damage precursors in fused silica," *Laser-Induced Damage Opt. Mater.* 2009 **7504**, 75040X (2009).
  161. I. H. Malitson, "Interspecimen Comparison of the Refractive Index of Fused Silica\*, †," *J. Opt. Soc. Am.* **55**, 1205 (1965).
  162. J. Kasparian, R. Sauerbrey, and S. L. Chin, "The critical laser intensity of self-guided light filaments in air," *Appl. Phys. B Lasers Opt.* **71**, 877–879 (2000).
  163. C. Pasquier, M. Sentis, O. Utéza, and N. Sanner, "Predictable surface ablation of dielectrics with few-cycle laser pulse even beyond air ionization," *Appl. Phys. Lett.* **109**, 051102 (2016).
  164. H. R. Reiss, "Polarization effects in high-order multiphoton ionization," *Phys. Rev. Lett.* **29**, 1129–1131 (1972).
  165. E. Smetanina, P. González de Alaiza Martínez, I. Thiele, B. Chimier, A. Bourgeade, and G. Duchateau, "Optical Bloch modeling of femtosecond-laser-induced electron dynamics in dielectrics," *Phys. Rev. E* **101**, 063206 (2020).
  166. G. Duchateau, "Simple models for laser-induced damage and conditioning of potassium dihydrogen phosphate crystals by nanosecond pulses," *Opt. Express* **17**, 10434 (2009).
  167. J. J. Adams, J. A. Jarboe, M. D. Feit, and R. P. Hackel, "Comparison between S/1 and R/1 tests and damage density vs. fluence ( $p(\Phi)$ ) results for unconditioned and sub-nanosecond laser-conditioned KD 2 PO 4 crystals," *Laser-Induced Damage Opt. Mater.* 2007 **6720**, 672014 (2007).
  168. T. Nagata, M. Kamata, and M. Obara, "Optical waveguide fabrication with double pulse femtosecond lasers," *Appl. Phys. Lett.* **86**, 251103 (2005).
  169. P. Pozzi, "compressive-sensing-Gerchberg-Saxton," <https://github.com/csi-dcsc/compressive-sensing-Gerchberg-Saxton>.
  170. P. Pozzi, L. Maddalena, N. Ceffa, O. Soloviev, G. Vdovin, E. Carroll, and M. Verhaegen, "Fast Calculation of Computer Generated Holograms for 3D Photostimulation through Compressive-Sensing Gerchberg–Saxton Algorithm," *Methods Protoc.* **2**, 2 (2018).
  171. P. Pozzi, L. Maddalena, N. Ceffa, O. Soloviev, G. Vdovin, E. Carroll, and M. Verhaegen, *Fast*

- Calculation of Computer Generated Holograms for 3D Photostimulation through Compressive-Sensing Gerchberg–Saxton Algorithm* (Elsevier, 2018), Vol. 2.
172. R. Di Leonardo, F. Ianni, and G. Ruocco, "Computer generation of optimal holograms for optical trap arrays," *Opt. Express* **15**, 1913 (2007).
173. K. Mishchik, J. Lopez, O. D. Caulier, G. Duchateau, B. Chassagne, R. Kling, C. Hoenninger, and E. Mottay, "Laser glass cutting by spatio-temporal control of energy deposition using bursts of femtosecond pulses," in *Conference on Lasers and Electro-Optics* (OSA, 2017), Vol. 2017-Janua, p. ATu4C.3.
174. "GoodFellow, SiO<sub>2</sub> Glass Properties," <http://www.goodfellow.com/E/Fused-Silica.html>.
175. "Accuratus, SiO<sub>2</sub> Glass Properties," <https://www accuratus.com/fused.html>.
176. A. Pedone, M. C. Menziani, and A. N. Cormack, "Dynamics of Fracture in Silica and Soda-Silicate Glasses: From Bulk Materials to Nanowires," *J. Phys. Chem. C* **119**, 25499–25507 (2015).
177. N. Varkentina, N. Sanner, M. Lebugle, M. Sentis, and O. Utéza, "Absorption of a single 500 fs laser pulse at the surface of fused silica: Energy balance and ablation efficiency," *J. Appl. Phys.* **114**, 173105 (2013).
178. "WinCamD User Manual," 143 (2018).



# LISTE DES COMMUNICATIONS

---

## Articles publiés

**K. Gaudfrin**, J. Lopez, K. Mishchik, L. Gemini, R. Kling, and G. Duchateau, “Fused silica ablation by double femtosecond laser pulses: influence of polarization state”, *Optics Express* 28, 15189-15206 (2020)

**K. Gaudfrin**, G. Duchateau, R. Kling, and K. Mishchik, J. Lopez. “Fused silica ablation by double femtosecond laser pulses with variable delay”, in *Laser Applications in Microelectronic and Optoelectronic Manufacturing (LAMOM) XXIV* (2019).

**K. Gaudfrin**, Romain Diaz, G. Beaugrand, S. Bucourt, and R. Kling, “Adaptive optics for intra-volume engraving of glass with ultra-short laser pulses”, *ICALEO 2017*, M405 (2017)

L. Lamaignère, **K. Gaudfrin**, T. Donval, J. Natoli, J. Sajer, D. Penninckx, R. Courchinoux, and R. Diaz, “Laser-induced damage of fused silica optics at 355 nm due to backward stimulated Brillouin scattering: experimental and theoretical results”, *Optics Express* 26, 11744-11755 (2018)

K. Mishchik, **K. Gaudfrin**, and J. Lopez, “Drilling of through holes in sapphire using femto-second laser pulses,” *J. Laser Micro/Nanoeng.* 12(3), 321–324 (2017).

E. Audouard, J. Lopez, B. Ancelot, **K. Gaudfrin**, R. Kling, and E. Mottay, “Optimization of surface engraving quality with ultrafast lasers”, *J. Laser Appl.* 29, 022210 (2017)

## Articles en préparation

K. Gaudfrin, J. Lopez, G. Duchateau *et al.* “Fused silica ablation by double subpicosecond laser pulses with dual wavelength and variable delays”

K. Gaudfrin, J. Lopez, G. Duchateau *et al.* “Experiment and modeling for simultaneous ablation of fused silica by femtosecond laser pulses”

## Conférences internationales

Photonics west 2019 à San Francisco aux États-Unis. Présentation orale : “Fused silica ablation by double femtosecond laser pulses with variable delays”.

ICALEO 2017 à Atlanta aux États-Unis. Présentation orale : “Adaptive optics for intra-volume laser engraving of glass with ultra-short laser pulses”

## **GDR**

LEPICE 2020 (*Lasers énergétiques et intenses et plasmas sous conditions extrêmes*) à Bordeaux.  
Présentation orale, “Ablation de la silice par double impulsion laser brève mono et bi-chromatique”.

## **Écoles d’été**

APPOLO 2019 (*ultra-short pulse lasers applications in Material Processing*) à Vilnius en Lituanie.  
Présentation orale et poster.

## ABSTRACT

---

### Laser ablation by double pico-femtosecond, mono-bi-chromatic pulses, and multiperforation of fused silica

This thesis work is part of a project aiming at drilling glass with an ultrafast laser pulse. The objective is to multi-perforate glass for the *interposers* used in the manufacture of electronic components such as processors or memory units, with holes of a characteristic size of about ten microns. This drilling results from : the ablation of the material induced by the deposition of laser energy, which is mainly governed by electronic dynamics. The latter involves various processes (ionization, free electron heating and electron recombination), whose contribution depends on the characteristics of the pulse in terms of wavelength, time shape, duration, polarization and fluence. This research work has made it possible to explore different ways to increase ablation efficiency and reduce drilling time, while maintaining the machining quality of femtosecond laser pulses. It is based on two work axes. The first axis aims to optimize energy deposition by temporal pulse shaping, which consists of dividing the initial laser pulse into two sub-pulses. Experimental work was initially carried out with two sub-pulses of the same wavelength, varying various parameters such as delay, total fluence and polarization state. The ablation efficiency is maximal for a zero delay. Polarization also has a significant influence on the ablation efficiency. In a second step, the work was conducted with two sub-pulses of different wavelengths, varying the delay, the total fluence, the energy distribution between the two sub-pulses and the duration of the second pulse. The optimum delay is 1 ps. The analysis of these experimental results was supported by the development of an electronic dynamics model. The second axis consists in reducing the drilling time by simultaneous irradiation of several points. However, laser drilling induces in the glass a significant thermal load whose relaxation can lead to the appearance of residual mechanical stresses, or even to glass break by cracking. The parallelization of the process can introduce cooperative effects between the sub-beams that can amplify these undesirable phenomena. To study these phenomena and determine the limits of the process, experimental results obtained with different geometries produced by a phase modulator were compared to those predicted by a thermo-elastic model. The probability of cracking increases strongly at high fluence (several tens of  $\text{J}/\text{cm}^2$ ) and for a distance between holes of the order of the diameter of the holes. Other than this configuration, the parallelization of the process does not introduce any risk of cracking. This work has made it possible, on the one hand, to clarify the interest of the double pulse mono and bi-chromatic process for laser drilling, and on the other hand, to identify the limits of parallelization of the laser drilling process.

# RÉSUMÉ

---

## Ablation laser par double impulsion pico-femtosecondes, mono-bi-chromatique, et multiperforation de la silice fondue

Ce travail de thèse s'inscrit dans le cadre d'un projet visant à percer du verre par impulsion laser brève. L'objectif consiste à multi-perforer du verre pour les *interposers* utilisés dans la fabrication des composants électroniques tels que les processeurs ou les unités mémoires, avec des trous de taille caractéristique d'une dizaine de microns. Ce perçage résulte de : l'ablation du matériau induite par le dépôt d'énergie laser, lequel est principalement régi par la dynamique électronique. Cette dernière implique divers processus (l'ionisation, le chauffage des électrons libres et la recombinaison électronique), dont la contribution dépend des caractéristiques de l'impulsion en termes de longueur d'onde, forme temporelle, durée, polarisation et fluence. Ce travail de recherche a permis d'explorer différentes voies dans le but d'augmenter l'efficacité d'ablation et de réduire le temps de perçage, tout en conservant la qualité d'usinage propre aux impulsions laser femtosecondes. Il s'articule autour de deux axes de travail. Le premier axe vise à optimiser le dépôt d'énergie par une mise en forme temporelle des impulsions, consistant à diviser l'impulsion laser initiale en deux sous-impulsions. Les travaux expérimentaux ont dans un premier temps été menés avec deux sous-impulsions de même longueur d'onde, en faisant varier divers paramètres tels que le délai, la fluence totale et l'état de polarisation. L'efficacité d'ablation est maximale pour un délai nul. La polarisation a aussi une influence significative sur l'efficacité d'ablation. Dans un second temps, les travaux ont été conduits avec deux sous-impulsions de longueurs d'onde différentes, en faisant varier le délai, la fluence totale, la répartition de l'énergie entre les deux sous-impulsions et la durée de la seconde impulsion. Le délai optimum est alors de 1 ps. L'analyse de ces résultats expérimentaux a été soutenue par le développement d'un modèle de dynamique électronique. Le second axe consiste à réduire le temps de perçage par irradiation simultanée de plusieurs points. Cependant, le perçage laser induit dans le verre une charge thermique significative dont la relaxation peut conduire à l'apparition de contraintes mécaniques résiduelles, voire à la rupture du verre par fissuration. La parallélisation du procédé peut introduire des effets coopératifs entre les sous-faisceaux pouvant amplifier ces phénomènes indésirables. Pour étudier ces phénomènes et déterminer les limites du procédé, les résultats expérimentaux obtenus avec différentes géométries produites par un modulateur de phase ont été comparés à ceux prédits par un modèle thermo-élastique. La probabilité de fissuration augmente fortement à forte fluence (plusieurs dizaines de  $J/cm^2$ ) et pour une distance entre les trous de l'ordre du diamètre de ces trous. En dehors de cette configuration, la parallélisation du procédé n'introduit pas de risque de fissuration. Ces travaux ont permis, d'une part, de clarifier l'intérêt du procédé double impulsion mono et bi-chromatique pour le perçage laser, et d'autre part d'identifier les limites de la parallélisation du procédé de perçage laser.