

Interaction laser-matière aspects fondamentaux

Afin d'introduire l'intérêt des lasers femtoseconde pour l'interaction laser-matière, et ainsi justifier l'intérêt de la mise en forme spatiale de telles sources, ce chapitre présente de façon succincte les mécanismes d'interaction dans un solide sous l'influence d'un champ électromagnétique intense ultrabref. De nombreuses études fondamentales sur les processus physiques mis en jeu ont été menées depuis une vingtaine d'années et ce domaine est encore très actif aujourd'hui. Ces travaux ont permis des progrès notables dans la compréhension des mécanismes, permettant de faire émerger à l'heure actuelle une vision assez claire des processus d'interaction laser-matière lors de l'irradiation par des impulsions ultrabrèves. Dans la suite, nous commençons par exposer la trame générale du phénomène d'interaction laser-matière en détaillant les différents processus physiques mis en jeu, communs aux métaux et aux diélectriques. Le cas de chaque matériau est ensuite abordé plus en détail.

5.1 Concepts généraux de l'interaction laser-matière

5.1.1 Mécanismes physiques

Nous résumons ici les différents mécanismes ayant lieu dans un solide irradié par un faisceau laser femtoseconde. Bien que ces mécanismes soient en réalité plus ou moins concomitants, une présentation chronologique permet d'insister sur les échelles de temps associées aux différents phénomènes conduisant *in fine* à l'ablation de matière.

Un solide peut être décrit comme un réseau d'ions entourés d'électrons, plus ou moins liés selon la nature du matériau (isolant ou conducteur). Lors de l'irradiation d'un solide par un champ électromagnétique intense, l'énergie est absorbée principalement par les électrons, avec des mécanismes qui diffèrent selon les matériaux*. Les électrons absorbent l'énergie des photons quasi-instantanément (<1 fs), cette absorption dépendant à la fois des propriétés du matériau et du laser utilisé (intensité, longueur d'onde, durée d'impulsion). L'énergie est ensuite transférée au réseau d'ions progressivement, sur une échelle de temps typique de 1 à 10 picosecondes. L'intérêt des impulsions de durée inférieure à cette valeur réside dans le fait que de l'énergie est déposée dans le matériau bien avant que le solide (électrons+ions) ne soit thermalisé, découplant ainsi les dynamiques d'évolution des électrons et du réseau d'ions. Pour une impulsion femtoseconde, dont la durée est comparable au temps de relaxation des électrons entre eux (10 à 100 fs), le transfert d'énergie au réseau d'ions n'a lieu qu'après le passage de l'impulsion : le solide est alors constitué d'un gaz d'électrons chauds entourant un réseau d'ions encore froids (immobiles). Ce dépôt d'une grande quantité d'énergie dans le matériau sur un temps bien inférieur aux temps typiques de thermalisation est assimilable à un choc thermique. Des états d'excitation avec un système largement hors-équilibre peuvent alors être atteints, ce qui permet d'observer des phénomènes non thermiques originaux comme par exemple une fusion ultrabrève (transition de phase solide-liquide inférieure à 1 ps [53-55]), une surfusion [56] ou un changement de phase solide-plasma ultrabref** dans les diélectriques et les semi-

* Dans un métal, qui contient déjà des électrons quasi-libres, ceux-ci gagnent de l'énergie par un processus classique de chauffage (absorption *linéaire* des photons). Dans un diélectrique, qui présente un gap d'énergie entre la bande de valence et la bande de conduction (vide) supérieur à l'énergie d'un photon visible, des processus *non linéaires* comme l'absorption multiphotonique peuvent entrer en jeu si l'intensité laser est suffisante. Ces mécanismes seront détaillés plus loin.

** Les transitions de phase ultra-rapides sont d'autant plus favorisées que l'intensité laser est grande, donc que la durée d'impulsion est courte.

conducteurs, conduisant à l'éjection directe de matière si l'intensité du champ électrique dépasse le seuil d'ablation du matériau, ou encore une réorganisation ultra-rapide de la structure cristalline voire même une perte d'ordre dans les diélectriques [57, 58], qui peut induire une modification de l'indice de réfraction.

Après la thermalisation électrons-réseau (quelques picosecondes), le solide est à nouveau en équilibre thermodynamique. Selon la fluence laser absorbée par le matériau, plusieurs types de modifications sont observables. Si la température du solide excède le point de fusion ou d'évaporation, des transitions de phase peuvent avoir lieu, et s'effectuent à l'échelle de 100 ps à 10 ns selon les matériaux. Une fois les ions chauffés, une partie de l'énergie déposée par l'impulsion laser étant convertie en énergie cinétique des ions du réseau cristallin, des atomes, ions, molécules ou agrégats peuvent être violemment éjectés si leur énergie est suffisante, conduisant à l'ablation de matière lors d'une irradiation de surface, ou à la formation de cavités lors de la focalisation dans la masse d'un verre. Si l'énergie laser déposée n'est pas suffisante pour réaliser cette ablation, la température revient progressivement à la température ambiante (avec des processus de resolidification) sur une échelle de temps de quelques microsecondes pour les diélectriques et quelques nanosecondes pour les métaux. Cependant, le matériau ne revient pas nécessairement à son état initial de structure ou de phase, il peut alors présenter des modifications structurelles.

La figure 5.1, issue de [59], présente un récapitulatif des mécanismes évoqués ci-dessus. La considération de la constante de temps de thermalisation électrons-réseau suggère que l'ablation, qui intervient après, peut alors être considérée comme un phénomène thermique. Cependant, lors de l'interaction avec des impulsions ultra-courtes, on a affaire à des processus hautement transitoires. Les différents mécanismes sont plus ou moins superposés dans le temps, et les équilibres thermiques entre les différentes phases susceptibles d'être présentes dans le matériau sont loin d'être atteints. De plus, l'éjection de matière intervient au début de la diffusion thermique dans l'ensemble du matériau, c'est-à-dire que le transfert de chaleur dans des zones non irradiées environnantes est encore très réduit, voire inexistant selon les matériaux. La zone d'interaction est donc très localisée. Dans ces conditions, on saisit bien l'intérêt de contrôler la forme du point focal, que ce soit pour l'ablation précise et propre de surface ou pour la création de modifications structurelles bien localisées dans les diélectriques, permettant par exemple de contrôler la forme de la zone où l'indice de réfraction est modifié.

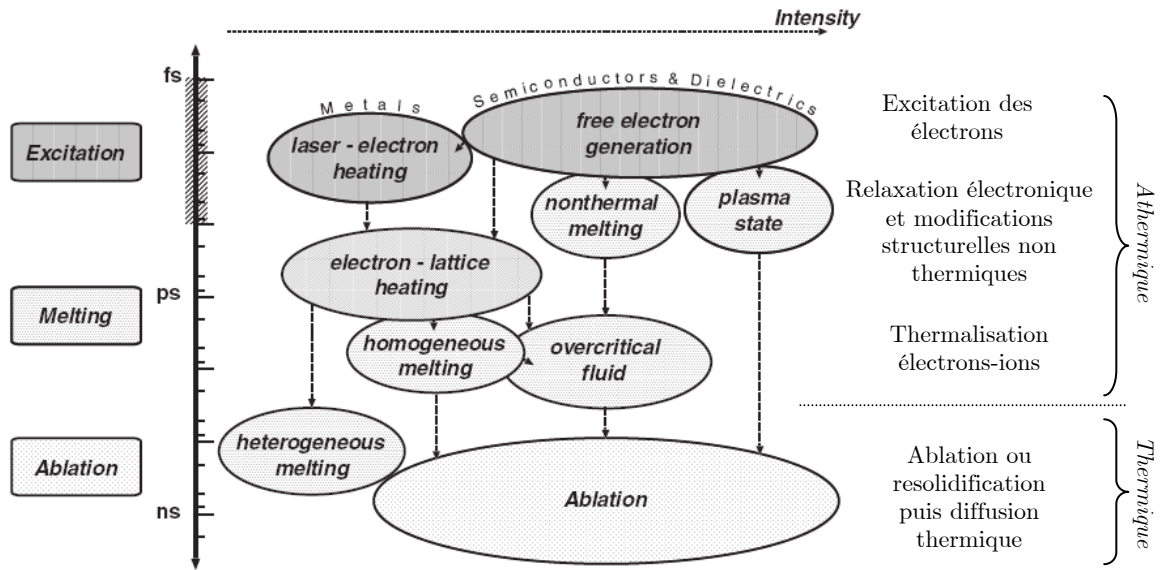


Figure 5.1 – Récapitulatif des temps caractéristiques et des intensités pour les mécanismes physiques lors de l'irradiation d'un solide par des impulsions femtosecondes (d'après [59]). L'excitation a lieu pendant ~ 100 fs, des modifications structurales ont lieu avant ~ 1 ps, puis une fusion commence, l'expansion et l'ablation éventuelle du matériau ont lieu à partir de ~ 100 ps. La limite entre phénomènes thermiques et athermiques se situe grossièrement autour d'une dizaine de picosecondes.

5.1.2 Comparaison entre impulsions femtosecondes et nanosecondes

Par opposition aux impulsions femtosecondes, une impulsion nanoseconde (ou d'une durée au moins supérieure à quelques dizaines de picosecondes) induit elle aussi une modification du matériau, mais celle-ci est gouvernée par un processus classique de dépôt de chaleur par chauffage d'électrons avec un transfert d'énergie à la matrice cristalline *en équilibre thermodynamique* tout au long de la durée de l'impulsion*. Autrement dit, le chauffage du réseau d'ions a lieu pendant l'impulsion laser. De même, les transitions de phase éventuelles se produisent également pendant l'impulsion, jusqu'à la fusion ou l'évaporation. Ce type d'interaction avec des impulsions longues est donc purement thermique. De ce fait, lorsque l'on compare les résultats d'usinage de surface avec des impulsions femtosecondes (figure 5.2.a) et nanosecondes (figure 5.2.b), la zone ablatée est moins nettement délimitée avec les impulsions longues, avec une zone thermiquement affectée autour du trou pouvant être significative (une dizaine de microns).

* De plus, le panache de matière éjectée peut alors interagir avec l'impulsion elle-même, engendrant d'autres mécanismes comme par exemple des redépôts de matière.

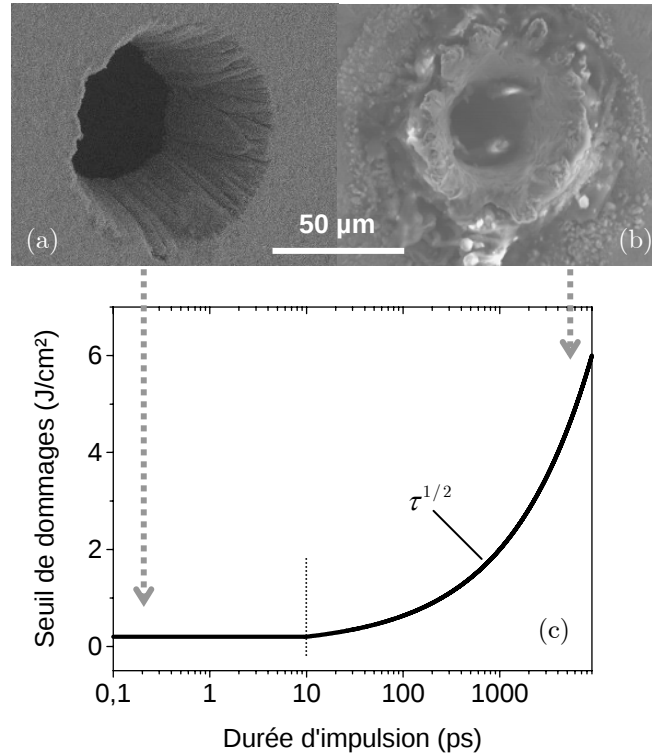


Figure 5.2 – Micro-usinage laser sur des échantillons de cuivre de 100 μm d'épaisseur, avec une fluence de 8 J/cm^2 dans les deux cas : (a) impulsion de 180 fs, (b) impulsion de 8 ns (d'après [60]). La courbe (c) représente l'influence de la durée d'impulsion τ sur le seuil de dommage : aucune influence en dessous de ~ 10 ps, loi en $\tau^{1/2}$ au-delà (d'après [61-63]).

La figure 5.2.c présente l'influence de la durée d'impulsion sur le seuil de dommage [61-63]. Deux régimes de comportement des matériaux peuvent être différenciés : augmentation du seuil de dommage avec la durée d'impulsion au delà de 10 ps, aucune dépendance si la durée d'impulsion est inférieure à 10 ps. Comme on l'a déjà précisé, ce temps correspond au temps de thermalisation entre les électrons et le réseau d'ions, et distingue les mécanismes d'interaction thermiques et athermiques.

Pour des impulsions longues, c'est la dynamique de conductivité thermique du réseau d'ions qui régit le processus d'interaction. En d'autres termes, le seuil de dommage dépend de la capacité du matériau à évacuer l'énergie déposée par diffusion thermique. Un modèle thermique simple prédit une dépendance du seuil de dommages en fonction de la racine carrée $\tau^{1/2}$ de la durée d'impulsion [64], en accord avec les nombreuses expériences réalisées à ce sujet (voir par exemple [65]).

Pour des durées d'impulsion subpicosecondes, le seuil de dommages est indépendant de la durée d'impulsion. La figure 5.2 montre des résultats d'ablation sur un métal, mais le même type de dépendance avec la durée d'impulsion est observé pour les diélectriques*, la seule différence notable étant des seuils de dommages un ordre de grandeur plus élevés (typiquement quelques centaines de mJ/cm² pour les métaux, quelques J/cm² pour les diélectriques). Afin de décrire l'état du matériau irradié par des impulsions subpicosecondes, on utilise un modèle à deux températures dans les métaux [66-68] et un modèle d'ionisation non-linéaire dans les diélectriques [61, 69]. La déviation observée par rapport à la loi en $\tau^{1/2}$ s'accompagne en particulier de phénomènes très reproductibles. Cette caractéristique de l'interaction laser-matériau est cruciale pour les applications, car elle donne la possibilité de contrôler extrêmement précisément la zone modifiée ou ablatée, à condition d'être capable de contrôler la forme spatiale du faisceau laser. Dans ces conditions, l'intérêt que peut apporter une mise en forme dynamique de tache focale est bien mis en valeur.

5.2 Interaction laser-métal

Après l'introduction du paragraphe précédent sur l'interaction laser-solide en général, on expose ici de manière plus détaillée les mécanismes de l'interaction laser-métal en régime femtoseconde, jusqu'à l'ablation de matière.

5.2.1 Absorption de photons

Un métal peut être décrit comme un solide cristallin formé d'un réseau d'ions quasi-fixes, entouré d'un gaz d'électrons quasi-libres [70, 71]. La densité d'états électronique $n(E)$ obéit à une distribution de Fermi-Dirac, représentée sur la figure 5.3.a en fonction de l'énergie E .

$$n(E) = \frac{1}{1 + \exp\left(-\frac{E - E_F}{kT}\right)} \quad (5.1)$$

* En dessous de 10 ps, la courbe n'est cependant pas exactement constante.

L'énergie de Fermi E_F correspond au dernier niveau d'énergie occupé à la température de zéro degré Kelvin. Un photon d'énergie $h\nu$ peut être absorbé par les électrons d'énergie comprise entre E_F et $E_F - h\nu$, conformément au principe d'exclusion de Pauli (figure 5.3.b). Une thermalisation électronique s'effectue par collisions électrons-électrons*, sur une échelle de temps de 10 à 100 femtosecondes** [72], permettant alors de définir une température électronique T_e puisque ce sous-système est revenu dans un état de quasi-équilibre thermodynamique. La distribution énergétique des électrons est alors décrite par une nouvelle distribution de Fermi-Dirac, qui contient des électrons dans des états excités d'énergie supérieure à E_F (figure 5.3.c). Si un électron présente une énergie bien supérieure à l'énergie de Fermi, et notamment à $E_F + h\nu$, un processus d'excitation par collisions permet d'augmenter le nombre d'électrons excités par transfert de l'énergie supplémentaire $h\nu$ à un électron d'énergie inférieure à E_F .

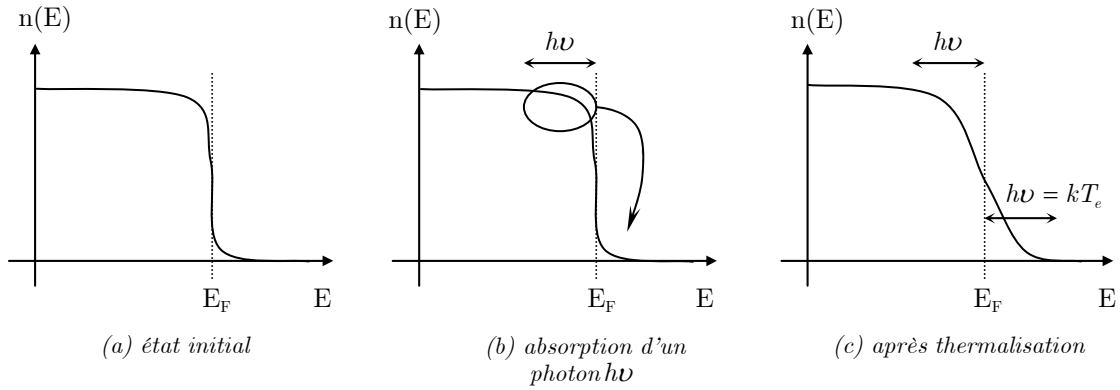


Figure 5.3 – Représentation schématisée des densités d'états électroniques en fonction de l'énergie. (a) à l'équilibre thermique, distribution de Fermi-Dirac ; (b) absorption d'un photon $h\nu$; (c) nouvelle distribution de Fermi-Dirac après thermalisation électronique.

Ce mécanisme correspond à un chauffage classique (linéaire) des électrons (mais pas du solide dans sa globalité). Cependant, ce phénomène a lieu en un temps extrêmement bref car la dynamique d'évolution de ce gaz d'électrons libres suit la forme temporelle de la source d'énergie : les électrons sont donc excités plus vite qu'ils ne peuvent transférer leur énergie au réseau d'ions. Ce gaz d'électrons libres extrêmement chauds (leur température peut atteindre plusieurs milliers de degrés Kelvin) peut être décrit par le modèle de Drude.

* Cette thermalisation par collisions électrons-électrons est favorisée par la grande densité électronique (typiquement 10^{21} cm^{-3}).

** Ce temps est inversement proportionnel à la fluence laser.

5.2.2 Thermalisation

A ce stade, on observe alors une thermalisation progressive du système global : les électrons chauds transfèrent leur énergie au réseau d'ions sous forme de phonons. Un phonon désigne le quantum d'énergie associé à un mode vibratoire du réseau d'ions. La rapidité du transfert thermique dépend étroitement de la force du couplage électron-phonon, caractéristique de chaque matériau [73]. Cette durée est typiquement de l'ordre de quelques picosecondes. Le système est hors-équilibre pendant toute cette phase, avec une température électronique T_e supérieure à la température ionique T_i . Une thermalisation complète du matériau ($T_e = T_i$) est atteinte typiquement au bout de quelques picosecondes après le dépôt d'énergie laser. Dès lors, tous les processus suivants et notamment les modifications structurales ou les changements de phase (fusion, vaporisation, ablation ou resolidification selon la fluence initiale) sont thermiques et peuvent être décrits par un modèle de diffusion thermique à une température.

Pour décrire l'état du matériau avant la thermalisation électrons-réseau, l'utilisation d'un modèle à deux températures est alors justifiée pour décrire séparément les évolutions temporelles des températures des électrons et des ions [74-76]. Anisimov *et al.* ont proposé ce modèle pour la première fois en 1974 [66], qui s'exprime sous la forme d'un système d'équations différentielles couplées décrivant les évolutions temporelles des températures électroniques et ioniques :

$$\begin{aligned} C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial z} \left(K_e \frac{\partial T_e}{\partial z} \right) - g \times (T_e - T_i) + S(z, t) \\ C_i \frac{\partial T_i}{\partial t} &= g \times (T_e - T_i) \end{aligned} \quad (5.2)$$

C_e et C_i sont les chaleurs spécifiques électroniques et ioniques, la constante g est un terme de couplage électron-phonon qui décrit le transfert d'énergie électronique au réseau d'ions. K_e est la conductivité thermique des électrons, et $S(z, t)$ est le terme source décrivant la densité de puissance déposée par une impulsion laser dans le gaz d'électrons. Dans la deuxième équation, le terme de diffusion thermique ionique peut être négligé devant le terme de transfert. Ce modèle à une dimension (selon l'axe laser z) peut être étendu à deux dimensions pour décrire également les effets thermiques dans la direction perpendiculaire à la surface, ce qui permet de définir une zone affectée thermiquement ZAT (c'est-à-dire dont les propriétés structurales ont également été

modifiées) dans l'environnement immédiat d'un trou d'usinage laser. Une ZAT d'extension spatiale dix fois plus faible avec une irradiation femtoseconde qu'avec une irradiation nanoseconde a été calculée et démontrée expérimentalement sur l'aluminium* [77, 78]. Le modèle à deux températures peut également être couplé à un code hydrodynamique tenant compte des changements de phase du métal [79] afin de procurer des informations plus précises sur les conditions de température et de pression induisant l'ablation, et permettant notamment de mettre en évidence la présence d'ondes de choc [80].

5.2.3 Ablation

Avec des impulsions nanosecondes, le processus d'ablation est dominé par l'hydrodynamique et la conduction de la chaleur, puisque la durée d'impulsion est supérieure à la fois au temps de thermalisation électron-phonon (1-10 ps) et au temps de diffusion thermique (~ 10 ns). On peut donc parler d'une "ablation thermique", gouvernée par l'expansion thermique du matériau en permanence en équilibre thermodynamique. Pour des impulsions subpicosecondes, l'ablation résulte de l'éjection de matière lorsque l'énergie fournie est supérieure à l'énergie de cohésion du matériau, augmentée de l'énergie cinétique nécessaire.

La question de savoir si l'ablation est finalement thermique ou non thermique persiste donc, étant donné les temps caractéristiques d'ablation. En effet, l'ablation débute après quelques picosecondes [81]. Ce temps correspond approximativement au temps de relaxation électrons-phonons, c'est-à-dire au temps de thermalisation du système {électrons+ions}, à partir duquel la diffusion thermique ionique commence à jouer un rôle. Ainsi, il est difficile de savoir si le matériau a atteint un état thermodynamique bien défini avant que l'ablation ne survienne. L'ablation résulte-t-elle d'un enchaînement de transitions de phase (solide-liquide puis liquide-gaz) en passant par des états (liquide et gazeux) thermodynamiquement définis ? Ou au contraire transite-t-elle par une étape de réorganisation structurale non thermique, suivie d'une éjection de matière par surplus d'énergie ? L'état obtenu après les modifications structurales peut-il être décrit comme un liquide ou un solide ? Si cet état est atteint en moins d'une picoseconde une transition de phase aussi rapide peut-elle être décrite

*Les tailles typiques sont respectivement quelques microns et quelques dizaines de microns.

par un cheminement thermodynamique ? Cette question est aujourd'hui loin d'être clairement tranchée.

5.2.4 Résumé

Il est commode de faire apparaître les mécanismes physiques présentés sur une courbe typique du modèle à deux températures. Le schéma de la figure 5.4 correspond au cas du cuivre (d'après [67]), mais la courbe a approximativement la même allure pour tous les métaux. On peut décrire le déroulement des différentes étapes dans l'ordre chronologique. Tout d'abord une excitation électronique qui peut faire monter la température électronique jusqu'à plusieurs milliers de degrés Kelvin (100 fs). Puis une relaxation électronique par collisions électrons-phonons entraînant un refroidissement des électrons qui s'accompagne d'un échauffement des ions. C'est pendant cet état hors équilibre que peuvent intervenir des modifications structurales non thermiques. L'égalité des températures est atteinte typiquement au bout de 1 à 10 ps suivant les matériaux. Les effets thermiques incluant les changements de phase (fusion, évaporation...) peuvent alors débiter. L'ablation survient de manière superposée entre la fin de la thermalisation électrons-ions et le début des effets thermiques. Enfin, un refroidissement accompagné d'une resolidification a lieu à l'échelle de 1 ns pour les métaux (1 μ s pour les diélectriques).

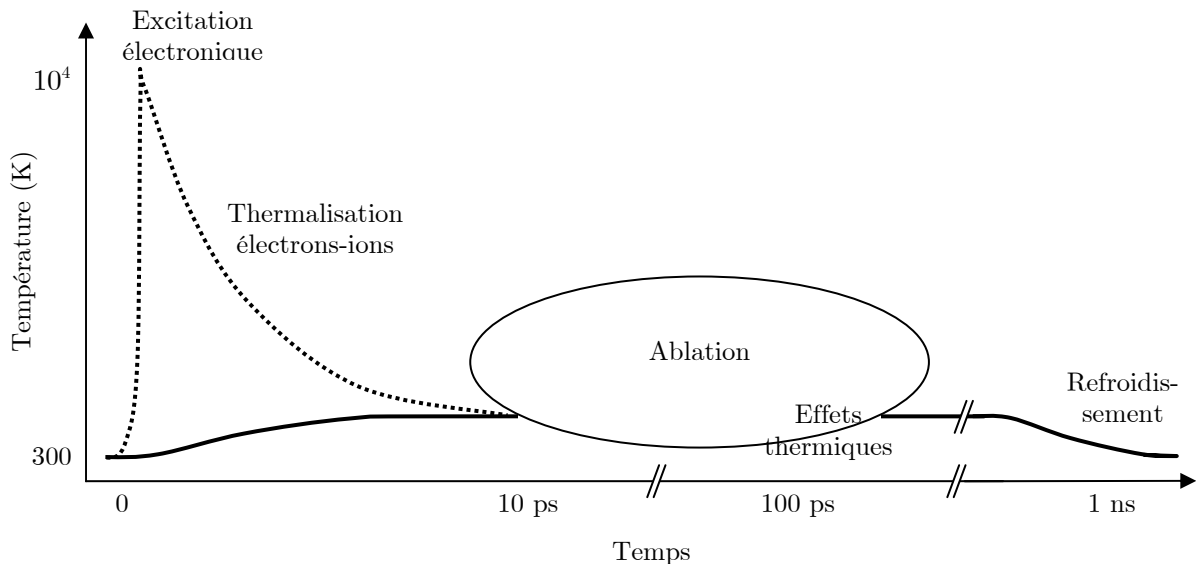


Figure 5.4 – Représentation schématique d'un résultat typique donné par le modèle à deux températures pour le cuivre, d'après [67]. Les mécanismes physiques ayant lieu au cours du processus sont mentionnés au dessus des courbes : température électronique en pointillés, température ionique en trait plein.

5.3 Interaction laser-diélectrique

Dans l’objectif de réaliser des guides d’ondes dans les matériaux diélectriques, nous nous intéressons à la modification de l’indice de réfraction provoquée par une irradiation laser femtoseconde focalisée dans la masse du matériau. On se situe donc dans des domaines de fluences inférieures à celles utilisées pour l’ablation de surface. Après l’interaction et les changements de phase éventuels, on assiste à une resolidification, qui laisse le matériau dans un état différent de son état initial, après avoir subi des modifications structurelles.

Ce paragraphe présente les mécanismes physiques conduisant au changement d’indice de réfraction d’un verre. De nombreuses questions étant encore ouvertes à l’heure actuelle, cette brève synthèse ne prétend pas à l’exhaustivité mais s’attache à exposer les mécanismes fondamentaux mis en jeu. De manière générale, deux phases peuvent être distinguées : l’excitation des électrons (photoionisation), suivie de la phase de relaxation du matériau où interviennent différents mécanismes contribuant à la modification de l’indice de réfraction.

5.3.1 Mécanismes d’excitation des électrons

Les électrons du matériau sont excités par absorption d’énergie lumineuse. Pour un diélectrique, tous les électrons sont initialement dans la bande de valence. Si le gap énergétique E_g séparant la bande de valence (BV) de la bande de conduction (BC) est supérieur à l’énergie $\hbar\omega$ d’un photon visible, le matériau est transparent. Pour un verre classique, le processus d’excitation est donc fortement non-linéaire. Après une première phase de photoionisation, un mécanisme d’ionisation par avalanche intervient pour créer un gaz dense et chaud d’électrons libres. Ces deux mécanismes sont détaillés ci-dessous.

5.3.1.1 Photoionisation

La photoionisation se découple elle-même en deux régimes : ionisation multiphotonique ou effet tunnel. C’est la valeur du paramètre de Keldysh qui fixe le mode de photoionisation [82] :

$$\gamma = \frac{\omega}{e} \sqrt{\frac{m_e c n \varepsilon_0 E_g}{I}} \quad (5.3)$$

Ce paramètre dépend du laser utilisé (fréquence laser ω , intensité laser I au point de focalisation (W/cm^2)), du matériau (indice de réfraction n , gap E_g), c étant la vitesse de la lumière, ε_0 la permittivité du vide et m_e la masse de l'électron. La transition entre les deux régimes se situe vers $\gamma \sim 1.5$. Pour des fortes intensités laser, l'ionisation se fait préférentiellement par effet tunnel, tandis que l'ionisation multiphotonique a lieu pour des intensités laser plus faibles. Une combinaison des deux mécanismes peut intervenir lorsque l'intensité se situe vers 10^{13} - $10^{14} \text{ W}/\text{cm}^2$, suivant le matériau. Ces deux mécanismes, illustrés sur la figure 5.5, sont détaillés ci-après.

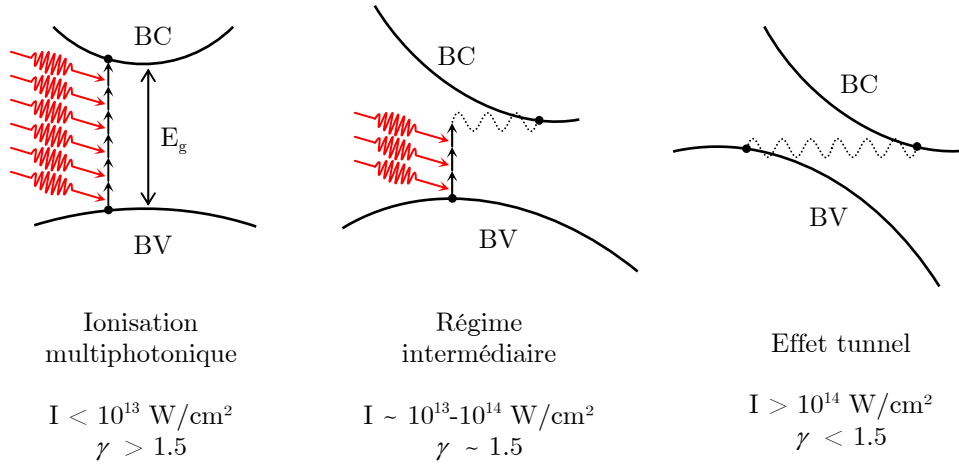


Figure 5.5 – Récapitulatif des mécanismes de photoionisation d'un atome (représentation sur un diagramme énergie-moment) : ionisation multiphotonique par absorption simultanée de plusieurs photons (à gauche), effet tunnel résultant de la déformation des bandes sous l'effet d'un champ électrique intense (à droite), régime intermédiaire avec la combinaison des deux mécanismes (au centre).

Ionisation multiphotonique

L'ionisation multiphotonique est une excitation non-linéaire due à l'absorption *simultanée* de plusieurs photons par un électron. Pour être promu de la BV à la BC, l'électron doit absorber suffisamment de photons pour dépasser le gap du matériau : $K\hbar\omega \geq E_g$ avec K : nombre de photons absorbés. Pour un laser femtoseconde à 800 nm, l'énergie d'un photon est $E_{\text{photon}} = 1.55 \text{ eV}$. Pour la silice SiO_2 , $E_g = 9 \text{ eV}$ donc il faut absorber 6 photons. Le taux d'ionisation multiphotonique s'exprime selon : $P(I)_{MPI} = \sigma_K I^K$, qui dépend fortement de l'intensité laser I (W/cm^2), σ_K étant la

section efficace d'absorption pour K photons. La densité électronique n dans la BC suit alors l'évolution donnée par :

$$\frac{dn(t)}{dt} = \sigma_K I(t)^K \quad (5.4)$$

Ionisation par effet tunnel

Sous l'effet du champ électrique extrêmement intense du laser, la structure de bandes du matériau se trouve modifiée : les bandes sont inclinées. Le puits de potentiel coulombien qui lie un électron de valence au noyau de son atome est alors suffisamment diminué pour que l'électron puisse traverser cette barrière énergétique par effet tunnel, et peupler ainsi la bande de conduction. D'après le paramètre de Keldysh, ce phénomène a lieu pour des champs très intenses (à partir de 10^{14} W/cm²) et des grandes longueurs d'onde. Dans le cas d'un matériau à grand gap comme SiO₂, l'effet tunnel semble jouer un rôle minoritaire. Cependant, peu d'études ont été menées à ce sujet.

Ces deux mécanismes de photoionisation (excitation multiphotonique ou effet tunnel) constituent un moyen d'initier l'ionisation des atomes. Les très fortes densités de puissance atteintes grâce aux impulsions ultra-courtes permettent de créer des électrons libres dans la bande de conduction, qui sont ensuite la source d'un phénomène d'ionisation par avalanche.

5.3.1.2 Ionisation par avalanche électronique

L'avalanche électronique est un mécanisme d'ionisation qui démarre lorsque la densité d'électrons libres est suffisamment importante dans le matériau*. La production de ces électrons initiaux ou électrons "source" provient majoritairement de la photoionisation**. Le mécanisme consiste en une absorption d'énergie lumineuse par les électrons, suivie d'une ionisation par collisions électroniques (figure 5.6). Un électron initialement présent dans la BC absorbe linéairement (donc successivement) plusieurs

* Par électrons libres, on entend électrons dans la BC du matériau ; dans un diélectriques les électrons ne sont pas libres, jusqu'à ce qu'il devienne « metal-like ».

** Quelques électrons peuvent aussi provenir de la présence d'impuretés ou de défauts dans le gap, qui sont facilement ionisables.

photons, ce qui le place dans des niveaux d'énergie supérieure dans la BC. Ceci correspond à un chauffage par effet Joule (encore appelé *Bremstrahlung inverse*). Remarquons que le moment doit être conservé, l'électron doit donc absorber ou émettre un phonon lors de l'absorption d'un photon. Lorsque cet électron a absorbé suffisamment de photons pour que son énergie dépasse celle du minimum de la BC d'au moins l'énergie de gap E_g du matériau ($E_{\text{électron}} - E_{BC} \geq E_g$), il peut alors ioniser par collision un électron de la bande de valence. On obtient donc deux électrons de même énergie au bas de la bande de conduction. Le mécanisme se répète alors : chaque électron absorbe à nouveau l'énergie lumineuse du laser et ionise à son tour un électron de la bande de valence, donnant ainsi lieu à un effet d'avalanche.

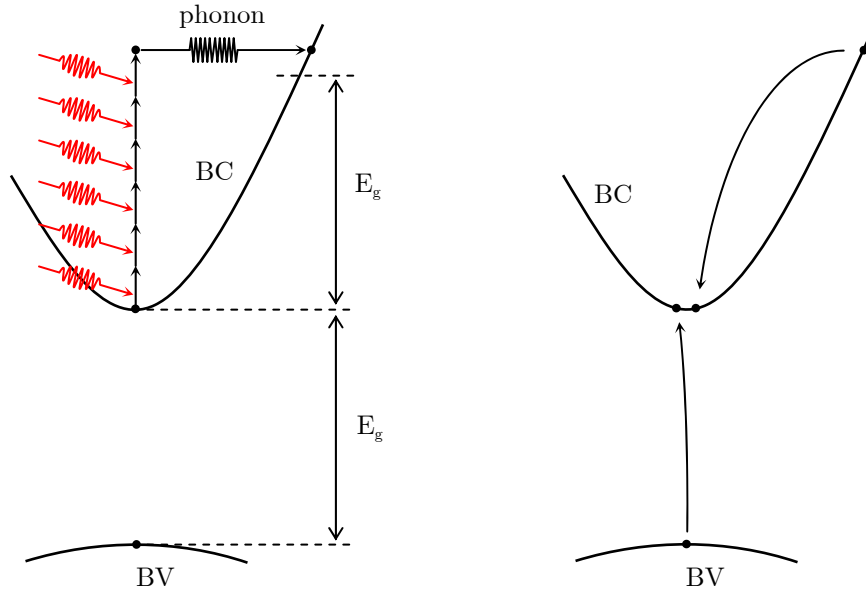


Figure 5.6 – Processus d'ionisation par avalanche électronique. Un électron initialement présent dans la BC absorbe successivement plusieurs photons. Il ionise alors un électron de la BV par collision. Au final, on obtient deux électrons au bas de la BC.

Tant que le champ laser est présent, la densité électronique n de la BC augmente exponentiellement selon :

$$\frac{dn}{dt} = \beta n(t) \quad (5.5)$$

où β est le taux d'ionisation par avalanche, qui dépend de l'intensité laser. Bien que certains auteurs aient prédit une dépendance en racine carrée de l'intensité [83, 84], le

modèle développé par Stuart *et al.* [61] et confirmé par les mesures de Lenzner *et al.* [69], prédisant une dépendance linéaire du taux d'ionisation par avalanche avec l'intensité laser, est aujourd'hui communément admis*. On écrit alors : $\beta = \alpha I(t)$ où α est le taux d'ionisation par avalanche donné par les calculs de Keldysh [82] (ces taux sont plus ou moins bien vérifiés expérimentalement [69]) et $I(t)$ le profil temporel de l'impulsion.

Des études sur les contributions relatives de l'ionisation multiphotonique et de l'ionisation collisionnelle par avalanche électronique ont montré que la première est dominante pour les impulsions les plus courtes [61]. Pour des impulsions extrêmement courtes (< 40 fs), l'ionisation mutliphotonique seule peut même suffire pour créer un plasma critique [85]. La largeur du gap joue également un rôle : l'ionisation par avalanche produit la majeure partie des électrons libres pour les matériaux à large gap (> 5 eV) tandis que la contribution de l'ionisation multiphotonique augmente avec les matériaux à faible gap [69, 86].

Pour obtenir une équation décrivant le plus fidèlement possible l'évolution temporelle de la densité électronique, Li *et al.* [87] ont été les premiers à proposer de tenir compte d'une diminution du nombre de porteurs, observée sur une échelle de temps d'une centaine de femtosecondes, et intervenant probablement par recombinaison par collisions électrons-électrons. Un terme de la forme $-n/\tau$ décrivant la décroissance exponentielle de la densité électronique est alors ajouté, pour obtenir finalement :

$$\frac{dn(t)}{dt} = \alpha I(t)n(t) + \sigma_K I(t)^K - \frac{n}{\tau} \quad (5.6)$$

Bien qu'étant perfectible, comme souligné par Tien *et al.* [88] (notamment en tenant compte de l'ionisation par effet tunnel), ce modèle est aujourd'hui largement utilisé. Cette équation décrit les phénomènes intervenant pendant la durée de l'impulsion (photoionisation) et immédiatement après (ionisation par avalanche), soit jusqu'à ~ 200 fs. La population d'électrons augmente jusqu'à former un plasma, c'est-à-dire un gaz d'électrons libres non dégénérés, décrit par le modèle de Drude. Ce plasma d'électrons libres qui se densifie en permanence cohabite avec le réseau d'ions froids, alors que la thermalisation par collisions électrons-phonons n'a pas encore débuté.

* Ce modèle repose sur deux hypothèses : i) un électron de la BC ionise un électron de la BV par collision dès qu'il possède assez d'énergie pour le faire, ii) la distribution d'énergie des électrons dans la BC ne change pas de forme lorsque la densité électronique augmente.

5.3.2 Plasma d'électrons libres

Le plasma d'électrons libres créé interagit avec l'onde lumineuse incidente. Afin de décrire cela, un indice de réfraction complexe du plasma dépendant de la fréquence laser peut être défini :

$$n(\omega) = n'(\omega) + in''(\omega) \quad (5.7)$$

La partie réelle de l'indice provoque une divergence du faisceau, la partie imaginaire régit l'absorption du plasma. Il est également possible de définir une fréquence plasma, qui dépend de la densité n d'électrons libres :

$$\omega_P = \sqrt{\frac{ne^2}{\epsilon_0 m_e}} \quad (5.8)$$

Si l'intensité laser est suffisamment forte, la densité électronique du plasma augmente par absorption d'énergie lumineuse jusqu'à ce que la fréquence plasma atteigne la fréquence laser. Ceci se produit typiquement pour une densité électronique critique n_{cr} de l'ordre de 10^{21} cm^{-3} . A ce stade, le matériau n'a plus les propriétés d'un diélectrique. En effet, la partie réelle de l'indice s'annule, le plasma devient alors réfléchissant et le diélectrique devient conducteur (échelle de temps $\sim 100 \text{ fs}$). Le diélectrique se comporte alors comme un métal. Ceci explique la similarité de comportement après ionisation des diélectriques et des métaux lors d'une irradiation femtoseconde : une fois ionisé, le matériau se retrouve dans le même état (plasma critique d'électrons libres), que ce soit à l'origine un métal ou un diélectrique.

Comme le processus d'ionisation est hautement non-linéaire et que le dépôt de l'énergie a lieu sur un temps plus court que le temps de thermalisation électron-réseau, la zone modifiée est à la fois très petite et précisément délimitée comme étant la région où la fluence est suffisante pour atteindre la densité critique (figure 5.7). Ceci permet un dépôt d'énergie très localisé dans la masse du matériau, sans dommages collatéraux et extrêmement reproductible.

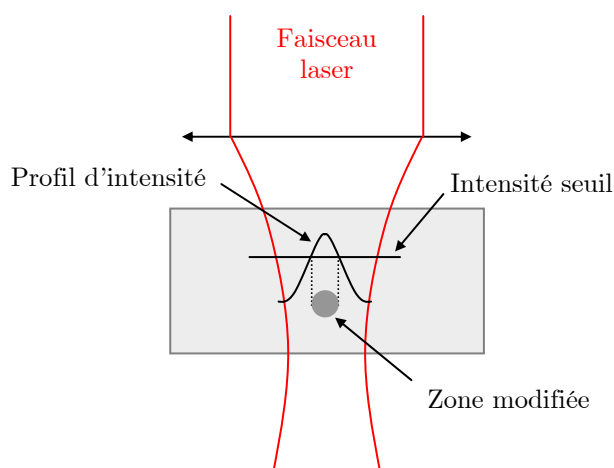


Figure 5.7 – Schéma illustrant la localisation précise du dépôt d'énergie dans le matériau et donc de la zone modifiée.

5.3.3 Du plasma d'électrons libres à la modification de l'indice de réfraction

La modification de l'indice de réfraction consécutive à l'irradiation laser femtoseconde provient des effets spécifiques induits par les mécanismes de relaxation du plasma. Si la littérature est assez unanime sur les phénomènes d'ionisation, de nombreuses interrogations et incertitudes subsistent concernant les mécanismes menant du plasma au changement d'indice. De plus, ces mécanismes dépendent étroitement du matériau considéré. L'effet d'une irradiation femtoseconde sur de nombreux types de verres a été étudié dans la littérature : silice pure SiO_2 , verres dopés au bore (BK7), dopés au fluor (ZBLAN), dopés Er/Yb pour leur conférer des propriétés amplificatrices... Grâce aux nombreuses recherches menées sur ce sujet depuis quelques années, des mécanismes généraux ont été identifiés. Plusieurs explications différentes sont avancées, mettant en évidence la contribution de mécanismes distincts, qui font l'objet des paragraphes qui suivent :

- la densification de matière par modifications structurelles
- la création de défauts et de centres colorés
- les contraintes mécaniques
- les effets thermiques

5.3.3.1 Introduction

Un verre est une structure amorphe, c'est-à-dire un solide non-cristallin, qui peut aussi être décrit par un liquide très visqueux, ou un solide obtenu par figeage d'un liquide surfondu qui n'a pas cristallisé. Une des propriétés caractéristiques d'un verre est qu'il ne possède pas de structure périodique, mais simplement une organisation structurale^{*}. La silice fondue SiO_2 , dont la structure est à base tétraédrique SiO_4 , forme un réseau tridimensionnel désordonné, qui s'organise en cycles (ou structures en anneaux) le plus souvent à 5 ou 6 atomes de Si. Les deux défauts les plus courants, aussi nommés centres colorés, sont les suivants :

- Centres E' ($\equiv \text{Si} \bullet$) : trou piégé par un site d'oxygène vacant
- Centres NBOHC "non-bridging oxygene hole center" ($\equiv \text{Si}-\text{O} \bullet$) : trou piégé par un oxygène non pontant

où "-" désigne une liaison et " $\bullet$ " un électron non apparié.

Ces défauts correspondent à des états stables dans le gap et peuvent être induits par irradiation laser. Leur présence et leur concentration est donc un moyen d'analyse pour la compréhension des mécanismes physiques provoqués par l'irradiation femtoseconde en faisant le lien avec une modification de l'indice de réfraction. Les techniques de caractérisation de ces défauts sont principalement la spectroscopie de fluorescence et la spectroscopie Raman, chaque modification ayant une signature bien particulière. Ces moyens d'analyse permettent également de déduire l'organisation structurale du réseau formé par les atomes de silicium et d'oxygène.

5.3.3.2 Modifications structurales et densification

Dans une vision extrêmement simpliste de l'effet de la relaxation du plasma d'électrons libres, on peut dire que le transfert d'énergie des électrons libres au réseau vitreux conduit à de très fortes élévations locales de température et de pression, jusqu'à la fusion locale du verre, induisant une densification de la région irradiée lors du refroidissement. De nombreuses études s'attachent aujourd'hui à clarifier ce phénomène.

^{*} S'il existe une périodicité, on a affaire à un cristal (ex : silice périodique = quartz).

Il est intéressant de commencer par mentionner les nombreux travaux réalisés sur les semiconducteurs, qui mettent en évidence une réorganisation moléculaire non-thermique. Les semiconducteurs rentrent dans le même cas que les diélectriques, à ceci près que l'ionisation initiale, c'est-à-dire la promotion des premiers électrons dans la bande de valence, est plus facilement réalisable. Le mécanisme non-linéaire d'absorption multiphotonique est donc moins mis à profit. De la même manière que pour les diélectriques, on arrive à un plasma d'électrons libres qui relaxe au cours du temps. Plusieurs auteurs [53, 57] ont observé des modifications structurales non thermiques, résultant directement de l'excitation électronique. Alors que la matrice cristalline est encore vibrationnellement froide, elle est déstabilisée par des forces de liaison plus faibles dues à la grande quantité d'atomes ionisés. Les ions peuvent alors se mouvoir assez loin de leurs positions initiales, causant ainsi des modifications structurales permanentes*, et non thermiques car ayant lieu sur des échelles de temps bien inférieures à la picoseconde [55, 58].

Dans les diélectriques, les modifications structurales peuvent également s'expliquer par des processus de réorganisation. Après irradiation laser femtoseconde, Chan *et al.* [89] ont observé une forte augmentation des pics Raman à 490 cm^{-1} et 605 cm^{-1} , aussi connus sous le nom de raies D_1 et D_2 , correspondant respectivement à des structures en anneau à 3 et 4 atomes de silicium. Ceci indique que l'insolation femtoseconde conduit à une densification du verre, se traduisant par des angles Si–O–Si plus faibles. Ces modifications structurales sont corrélées à une augmentation de l'indice de réfraction, qui dépend de la fluence laser utilisée ($\Delta n \sim 10^{-4}$ à $5 \cdot 10^{-2}$ pour des fluences respectives de 10 à 40 J/cm^2). Cependant, pour obtenir une structure guidante avec uniquement une modification d'indice sans dommage optique, les fluences doivent rester suffisamment faibles ($< 1\text{ J/cm}^2$), induisant alors une contribution à l'indice de réfraction inférieure à 10^{-3} [90]. Cette hypothèse de densification locale du verre comme contribution à l'augmentation de l'indice de réfraction avait déjà été avancée lors des premières publications à ce sujet par l'équipe de Miura *et al.* [91-93] suite à l'observation au microscope à force atomique de l'enfoncement de la surface de $\sim 40\text{ nm}$ dans la zone irradiée. Des simulations menées par Sen et Dickinson [94] indiquent que les modifications structurales semblent suffisantes pour expliquer les changements d'indice observés. A l'inverse, en observant une augmentation d'indice de 10^{-3} sans

* Le caractère réversible ou non des modifications structurales engendrées dépend de la fluence laser. Au delà de 10% de sites atomiques ionisés (soit typiquement une fluence de $\sim 0.1\text{ J/cm}^2$), la structure atomique est trop désorganisée pour pouvoir revenir dans son état initial.

modification évidente du spectre Raman, Streltsov et Borelli [95] concluent que la densification seule ne peut suffire à expliquer entièrement les variations d'indice mesurées. Ils estiment que la contribution de la densification est de l'ordre de 10% de la variation d'indice totale et attribuent la majeure partie à la formation de défauts.

Dans les cristaux, il n'est généralement pas possible d'induire une augmentation de l'indice de réfraction par irradiation femtoseconde comme dans les verres. Une explication simple vient du fait que les cristaux ont moins de degrés de liberté structurels. Tandis que la structure d'un verre peut se réarranger pour s'accommoder d'une perturbation produite par l'irradiation laser, un cristal n'a pas les mêmes possibilités : on assiste habituellement à une perte d'ordre structurel, autrement dit à un grand degré de désordre, contribuant à rendre le cristal structurellement amorphe [96].

5.3.3.3 Défauts et centres colorés

Pour un diélectrique, la relaxation du plasma d'électrons libres de la bande de conduction peut s'effectuer soit par recombinaison radiative directe électron-trou soit par piégeage dans des états intermédiaires dans le gap (figure 5.8). Une paire électron-trou peut se trouver piégée (en 150 fs) dans un état d'exciton proche du bas de la bande de conduction, qui se désexcite ensuite thermiquement en un centre E'. Un piégeage direct dans des pièges profonds comme les centres E' ou NBOHC est également possible. Si ces états se dés excitent radiativement, le système revient dans son état initial sans conséquence pour la structure du matériau. Dans le cas contraire, des défauts permanents sont créés, contribuant directement à la modification de l'indice de réfraction ($\Delta n > 0$ ou < 0 selon les défauts). La création de ces défauts, ou centres colorés, résulte de la brisure de liaisons [97], autorisant ainsi des déplacements d'atomes et des réorganisations structurelles conduisant à de nouveaux arrangements atomiques stables*. Le modèle de Lorentz permet de relier directement la variation d'indice de réfraction à la concentration des défauts et à leur position dans le gap. Notamment, l'augmentation de l'indice est d'autant plus forte que le défaut se situe profondément dans le gap [98]. Concernant l'ordre de grandeur de cette variation, la création de défauts sur 10% des sites atomiques engendre un Δn voisin de 1%.

* L'origine des centres de défauts dépend fortement du matériau.

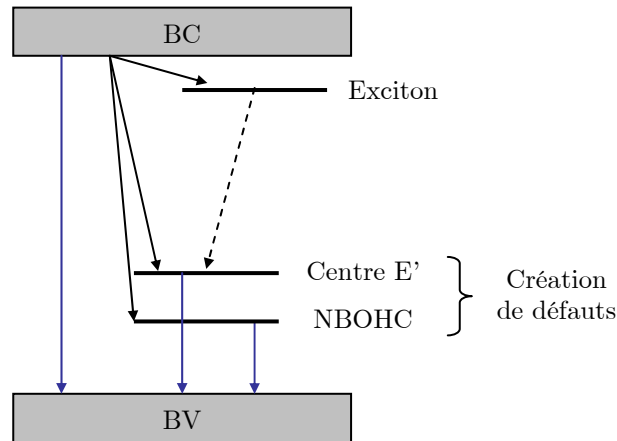


Figure 5.8 – Représentation schématisée des processus électroniques de recombinaison et de piégeage dans des états intermédiaires dans le gap. BV et BC désignent les bandes de valence et de conduction, les flèches bleues représentent les recombinaisons radiatives.

La présence de ces défauts est aisément révélée par des techniques de luminescence. Il a notamment été observé une large bande de fluorescence autour de 630 nm correspondant à la création de centres NBOHC dans la silice après irradiation femtoseconde, corrélée avec l'augmentation de l'indice de réfraction [89]. Strelstov et Borelli [95] mesurent une concentration de centres colorés (centres E' et NBOHC) de l'ordre de $3 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^{-3}$, en corrélation avec une augmentation d'indice de 10^{-3} . Ceci est en accord avec les concentrations observées lors de modification d'indice par photosensibilité UV. Cependant, les stabilités thermiques des centres colorés et de l'indice de réfraction ne sont pas corrélées [95]. En effet, Will *et al.* [99] ont montré que les modifications d'indice dans la silice pure sont très stables. Les propriétés de guidage sont préservées au delà de 500°C de température de recuit pendant plusieurs heures, tandis que les caractéristiques de fluorescence entre 560 nm et 630 nm liés aux centres colorés ne subsistent pas au delà de 400°C. Ils concluent donc que les variations de l'indice de réfraction dans la silice et les propriétés de guidage ne sont pas directement liées à la génération de centres colorés. Ces expériences et interprétations contradictoires méritent donc de plus amples travaux pour établir de façon claire le rôle de chaque mécanisme.

5.3.3.4 Contraintes mécaniques

Plusieurs équipes ont mis en évidence la présence d'une zone de contraintes mécaniques, éventuellement associée à des propriétés de biréfringence dans la zone irradiée, liées à la polarisation du faisceau laser incident [100-103]. Ceci constitue une indication supplémentaire en faveur d'une densification à l'origine de la modification d'indice, issu d'un processus de fusion-resolidification à l'intérieur du verre, comme suggéré par l'une des premières publications sur ce sujet : Glezer *et al.* [104, 105] observent même une onde de choc conduisant à une micro-explosion à l'intérieur du verre. Toujours dans cette optique d'explication thermodynamique du changement d'indice, Osellame *et al.* [106] ont proposé très récemment un mécanisme de solidification ultra-rapide (équivalent à une trempe) depuis l'extérieur, conduisant à une densification donc une augmentation d'indice sur les bords, tandis que la zone centrale se solidifie avec une densité plus faible donc une diminution d'indice de réfraction. De récentes simulations prenant en compte les champs de contrainte dans le matériau [107] suggèrent que la densification est induite par des contraintes mécaniques dans la zone d'absorption non-linéaire du champ optique. Ce phénomène dépend étroitement du type de verre utilisé. Dans les cristaux, rendus amorphes par irradiation femtoseconde, il est possible d'observer une zone guidante dans la région ayant subi des contraintes mécaniques tout autour de la zone irradiée [96]. D'autres expériences sont en accord avec cette explication, en montrant même une zone non guidante au centre due à la diminution de l'indice de réfraction, notamment dans les verres au phosphate [108], aux oxydes de métaux lourds [109], aux oxydes alcalins [110] ou dans le poly(méthylmétacrylate) [111].

5.3.3.5 Effets thermiques

Deux types d'effets thermiques fondamentalement différents sont susceptibles d'intervenir : celui provoqué par une unique impulsion, et celui résultant de l'accumulation d'un grand nombre d'impulsions successives.

Des expériences étudiant l'effet d'une impulsion ont été menées par Schäffer *et al.* [112], démontrant la possibilité de contrôler la morphologie de la zone modifiée en ajustant l'énergie du faisceau. Cette zone peut ainsi correspondre au volume focal lorsque l'énergie est réglée à une valeur proche du seuil de dommages. La dimension

latérale est déterminée par le diamètre du faisceau ($2w$), la profondeur par le paramètre confocal ($2z_R$). Dans ces conditions, les effets thermiques semblent donc absents. Dans un régime d'irradiation par un grand nombre d'impulsions à cadence faible (<20 kHz), le matériau refroidit entre deux impulsions car l'énergie déposée par une impulsion dans le volume focal est évacuée par diffusion thermique dans la masse du matériau en environ $1 \mu s$. Aucun mécanisme d'accumulation thermique n'est attendu *a priori*, la modification du matériau étant effectuée de manière indépendante par chaque impulsion. Par contre, il est possible d'observer des effets d'incubation dus au grand nombre d'impulsions. Lors d'une forte focalisation ($ON=1.4$), Schäffer *et al.* [113] n'observent pas d'effets d'incubation : la taille de la zone modifiée augmente avec l'énergie mais pas avec le nombre d'impulsions ; par contre, le Δn augmente avec le nombre d'impulsions. En revanche, lors d'une faible focalisation ($ON=0.25$), l'incubation est responsable de la diminution du seuil de dommages, comme observé lors d'expériences de surface [114, 115]. Dans ce dernier cas, il a été démontré [116] que l'effet de l'incubation est double : i) il modifie l'absorption par accumulation de défauts ii) il introduit de nouveaux chemins de déposition d'énergie dans le réseau cristallin, en plus du couplage électron-phonon, ces chemins étant basés sur un couplage des électrons piégés au réseau. L'augmentation de la concentration des défauts est proportionnelle à la concentration initiale de défauts, à l'incrément du nombre d'impulsions, et dépend aussi du nombre de sites atomiques susceptibles d'être affectés pendant le processus d'accumulation. Toujours dans ce régime de faible cadence (20 kHz), Streltsov et Borelli [95] ont montré dans la silice que l'augmentation d'indice en fonction de l'énergie laser semble suivre l'augmentation de température provoquée par une seule impulsion. D'un autre côté, comme une température élevée ($2500^\circ C$) limite l'augmentation d'indice, l'effet de la température n'est pas clairement établi. Avec une faible cadence (0.1-1 kHz), Sakakura *et al.* [117] observent un phénomène d'oscillation temporelle de l'indice de réfraction dans un verre soda-lime jusqu'à ~ 2 ns après le passage de l'impulsion femtoseconde, qu'ils associent à un effet majoritairement thermique couplé à une onde de pression. Une contribution thermique d'une unique impulsion à la modification d'indice n'est donc pas à écarter, mais des études complémentaires sont à mener pour apporter des réponses à cette question.

Dans un régime de cadence élevée (>1 MHz), la période entre deux impulsions est plus courte que le temps de diffusion thermique de l'énergie hors du volume focal. Le train d'impulsions chauffe alors progressivement le matériau, cette accumulation thermique conduisant à la modification d'un volume de matériau largement supérieur

au volume focal [118]. De plus, ce volume étant sphérique (la diffusion thermique est isotrope) et sa taille augmentant avec le nombre d'impulsions, le mécanisme intervenant est une fusion thermique, en accord avec les simulations correspondantes [118]. Lors de l'arrêt de l'irradiation, le matériau se resolidifie avec d'éventuels mécanismes de densification. Une étude très récente de la contribution thermique à l'augmentation de l'indice de réfraction en fonction de la cadence laser est proposée par Eaton *et al.* [119], suite à l'observation de l'augmentation de la taille de la zone modifiée avec le taux de répétition des impulsions laser [120]. Un effet d'accumulation thermique a été mis en évidence à partir de 200 kHz dans un verre borosilicate (gap faible : 3.9 eV), en accord avec les expériences de Schäffer *et al.* [118]. Dans les deux cas, le diamètre de la zone modifiée correspond au diamètre calculé comme devant être fondu, lorsque l'on prend en compte les caractéristiques du verre correspondant. Par contre, dans la silice pure (gap 9.1 eV), aucun effet d'accumulation n'a été constaté. Osellame *et al.* [106] montrent que les effets d'accumulation thermique pour la production de guides d'ondes à haute cadence dépendent étroitement du type de verre utilisé. A titre d'illustration, Eaton *et al.* [119] démontrent que les pertes peuvent être diminuées jusqu'à ~ 0.2 dB/cm en optimisant les paramètres expérimentaux dans un verre borosilicate.

5.3.4 Résumé

Lorsque des impulsions laser femtosecondes sont fortement focalisées dans un matériau diélectrique transparent, celui-ci absorbe l'énergie lumineuse. Comme les densités de puissance sont très élevées (10^{13} - 10^{14} W/cm²) à cause de la courte durée des impulsions, l'absorption est fortement non-linéaire, ce qui explique qu'elle puisse être localisée dans une zone extrêmement confinée, se situant dans la masse du matériau. Les atomes sont ionisés par absorption multiphotonique ou par effet tunnel, puis par avalanche collisionnelle. Cette ionisation conduit à la formation d'un gaz d'électrons libres dans le volume concerné, qui absorbe à son tour l'énergie laser. Ce mécanisme continue jusqu'à ce qu'un plasma de densité critique soit atteint (10^{21} cm⁻³), au sein duquel le dépôt d'énergie laser n'est plus possible. Avec des impulsions ultra-brèves et ultra-intenses, l'énergie est absorbée par les électrons plus rapidement qu'elle ne peut être transférée par les électrons vers le réseau cristallin, les ions sont encore froids. Sur une échelle d'une dizaine de picosecondes, les électrons chauffent les ions par collisions

électrons-phonons, et les deux systèmes atteignent un équilibre thermique à une température d'environ 10^5 K. Au bout d'une dizaine de nanosecondes, les électrons et les ions se recombinent. Après la relaxation du plasma, l'énergie résiduelle dans le matériau est principalement sous forme thermique. Cette énergie est alors évacuée du volume focal par diffusion thermique à l'échelle de la microseconde.

Des modifications structurales du matériau sont engendrées lors du transfert d'énergie aux ions. En fonction de l'énergie, on observe une transition d'un mécanisme de modification structurale non thermique par brisure de liaisons à un mécanisme de fusion ou de densification locale suivi d'une resolidification non uniforme à cause des forts gradients de température induits. Notamment, on constate une modification de l'indice de réfraction, attribué à la combinaison de plusieurs mécanismes dont certains sont encore mal compris. A l'échelle atomique, une création locale de défauts dans le gap contribue probablement pour une part importante à la modification d'indice. A l'échelle moléculaire, une réorganisation structurale couplée à une densification locale a été identifiée. A l'échelle microscopique voire macroscopique, des champs de contraintes mécaniques sont observés, en lien avec la modification d'indice. Enfin, suivant la cadence laser utilisée, une contribution thermique est également à considérer. Tous ces mécanismes sont interdépendants. Pour les applications, l'avantage des impulsions ultra-courtes pour la photoinscription en volume est qu'elles ne génèrent pas de cracks et permettent un contrôle très précis de la zone irradiée tout en offrant la possibilité d'accès aux trois dimensions de l'espace.

5.4 Conclusion

L'intérêt de l'interaction laser-matière avec des impulsions femtosecondes réside dans la possibilité de déposer une grande quantité d'énergie dans le matériau sur un temps bien inférieur aux temps typiques de thermalisation, c'est-à-dire de transfert de l'énergie à la masse du matériau (quelques picosecondes). En fonction de la quantité d'énergie déposée, ce procédé conduit soit à des modifications structurales ultra-rapides (<1 ps), soit à la formation d'un gaz d'électrons libres, dont le couplage avec le réseau conditionne l'ablation de matière ou la modification d'indice. Le matériau est alors modifié essentiellement dans la zone irradiée, avec une faible portion d'énergie transférée au matériau environnant, que ce soit par énergie thermique (chaleur),

mécanique (onde de choc) ou autre. Ainsi, un usinage de qualité peut être réalisé en surface sur des dimensions micrométriques. Dans des matériaux transparents, l'interaction peut se produire dans la masse, permettant ainsi la création de cavités ou de zones structurellement modifiées en volume selon la fluence utilisée. Notamment, dans certaines conditions, il est possible d'induire un changement contrôlé d'indice de réfraction.

Dans le cadre de ce travail, nous nous intéressons à l'usinage de surface des métaux et des diélectriques ainsi qu'à la photo-modification de l'indice de réfraction dans les verres, en apportant la contribution d'un contrôle dynamique de la forme du faisceau laser donc de la zone d'interaction. Ces deux thèmes font l'objet des deux chapitres suivants.