Contrôle du dépôt d'énergie par laser femtoseconde dans les diélectriques par faisceaux de Bessel : profil spatio-temporel de densité plasma et applications au clivage du verre.

Rémi Meyer

▶ **To cite this version:**

Rémi Meyer. Contrôle du dépôt d'énergie par laser femtoseconde dans les diélectriques par faisceaux de Bessel : profil spatio-temporel de densité plasma et applications au clivage du verre.. Optique [physics.optics]. Université Bourgogne Franche-Comté, 2020. Français. NNT : 2020UBFCD012 . tel-03123492

HAL Id: tel-03123492
https://theses.hal.science/tel-03123492

Submitted on 28 Jan 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.

UBFC
UNIVERSITÉ
BOURGOGNE FRANCHE-COMTÉ

UFC
UNIVERSITÉ
DE FRANCHE-COMTÉ

cnrs

THÈSE DE DOCTORAT DE L'ÉTABLISSEMENT UNIVERSITÉ BOURGOGNE FRANCHE-COMTE

PRÉPARÉE À L'UNIVERSITÉ DE FRANCHE-COMTE

École doctorale n°37

Sciences Pour l'Ingénieur et Microtechniques

Doctorat d'Optique et Photonique

par

RÉMI MEYER

Contrôle du dépôt d'énergie par laser femtoseconde dans les diélectriques par faisceaux de Bessel

Profil spatio-temporel de densité plasma et applications au clivage du verre

Thèse présentée et soutenue à Besançon, le 27 janvier 2020

Composition du Jury :

BELLOUARD YVES	Professeur associé, École Polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL), Neuchâtel	Rapporteur
WOLF JEAN-PIERRE	Professeur, Université de Genève	Président du jury
QUÉRÉ FABIEN	Directeur de recherche, Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives (CEA), Paris-Saclay	Examinateur
DUDLEY JOHN M.	Professeur, Université de Bourgogne Franche-Comté, Besançon	Examinateur
JACQUOT MAXIME	Professeur, Université de Bourgogne Franche-Comté, Besançon	Examinateur
COURVOISIER FRANÇOIS	Chargé de Recherche, Institut FEMTO-ST, Besançon	Directeur de thèse

N° | X | X | X |

école doctorale **sciences pour l'ingénieur et microtechniques**

Titre : Contrôle du dépôt d'énergie par laser femtoseconde dans les diélectriques par faisceaux de Bessel

Mots-clés : Optique ultrarapide, optique non-linéaire, impulsions femtoseconde, interaction laser-plasma, ablation laser, faisceaux de Bessel, clivage laser

Résumé :

L'utilisation d'impulsions ultrabrèves pour l'usinage laser permet une grande précision du dépôt d'énergie grâce à un fort confinement de l'interaction laser-matière. Les effets non-linéaires liés à ce confinement sont aussi usuellement responsables de distorsions et d'instabilités dans le profil d'intensité lors de la propagation. Les faisceaux de Bessel à hauts angles coniques ont démontré être très performants pour l'usinage des diélectriques grâce à leur robustesse aux effets non-linéaires. En régime femtoseconde, ils permettent alors de générer dans les milieux transparents des nanocanaux à haut rapport de forme par tirs uniques dans les milieux transparents. Cependant la dynamique d'ablation et le couplage de l'impulsion avec le plasma induit sont encore peu compris dans ce cadre, et le modèle courant les décrivant reste incompatible avec les observations expérimentales. Cette thèse a pour objectif d'étudier cette interaction et se divise en deux axes de travail. Le premier axe porte sur la caractérisation de l'interaction laser-matière dans les milieux transparents pour le cas des faisceaux de Bessel femtoseconde grâce au développement et à l'exploitation d'une expérience pompe-sonde interférométrique. Nous mesurons la dynamique du plasma via les modifications d'indice de réfraction qu'il induit, résolues dans le temps et l'espace. Les résultats préliminaires obtenus montrent que le plasma est confiné dans un rayon inférieur à un micron et que la densité du plasma approche de la densité critique pour une énergie proche du seuil de formation de nanocanaux. Dans un second axe, nous travaillons sur l'effet d'un alignement de nanocanaux sur la fracture d'échantillons de verre et les applications des faisceaux de Bessel pour le clivage du verre. Nous levons ici deux limites principales concernant la qualité de fracture, en optimisant le profil spatial du faisceau. Nous montrons que l'utilisation de faisceaux de Bessel elliptiques améliore considérablement la qualité de clivage pour les plaques de verre minces (150 µm), et nous établissons une preuve de principe de clivage du verre de grande épaisseur (10 mm) en un seul passage sous le laser grâce à l'utilisation d'un dispositif composé de 3 axicons.

Title: Contrôle du dépôt d'énergie par laser femtoseconde dans les diélectriques par faisceaux de Bessel

Keywords: Ultrafast optics, non-linear optics, femtosecond pulses, laser-plasma interaction, laser ablation, Bessel beams, laser cleaving

Abstract:

The use of ultrashort pulses for laser ablation allows for a precise energy deposition thanks to a highly confined laser-matter interaction. The non-linear effects causing this confinement are also usually responsible of beam profile distorsions along propagation and intensity instabilities. High cone angle Bessel beams have shown to be excellent candidates for dielectrics processing since they are robust to non-linear effects. In femtosecond regime, they are able to generate in single shot high aspect ratio nanochannels in transparent media. However the ablation dynamics and the coupling with the laser-induced plasma remain partially unclear in this case. The current model describing such interaction is uncompatible with experimental observations. This thesis investigates the laser-plasma interaction and follows two axes of work. First part is focused on the laser-plasma interaction characterization in transparent media and in the case of femtosecond Bessel beam, by developping and exploiting an interferometric pump-probe experiment. We measure the plasma dynamics through the plasma-related complex refraction index modifications, which we resolve in space and time. Preliminary results show a confined plasma (radius < 1 µm) in the transverse direction and whose density approaches the critical density for a pulse energy approaching the nanochannel formation threshold. In a second part, we investigate the effect of aligned nanochannels on the fracture ability of glass samples and its application to glass cleaving. Here we solve two limiting problems to high quality cleaving by spatial beam shape engineering: we demonstrate a signification improvement of 150 µm-thin glass cleaving by the use of elliptical-core Bessel beams; and we establish a proof of principle of 10 mm-thick glass single-pass cleaving thanks to a 3 axicons-based setup.

UBFC UNIVERSITÉ BOURGOGNE FRANCHE-COMTÉ
Université Bourgogne Franche-Comté
32, avenue de l'Observatoire
25000 Besançon, France

"L'expérimentateur se trouve sans cesse aux prises avec des faits qui ne se sont pas encore manifestés. L'inconnu dans le possible et aussi dans ce qui a été, voilà son domaine. Le charme de nos études, l'enchantement de la science, consistent en ce que, partout et toujours, nous pouvons donner la justification de nos principes et la preuve de nos découvertes."
Louis Pasteur (1822-1895)

"Je suis de ceux qui pensent que la science est d'une grande beauté. Un scientifique dans son laboratoire est non seulement un technicien : il est aussi un enfant placé devant des phénomènes naturels qui l'impressionnent comme des contes de fées."
Marie Skłodowska-Curie (1867-1934)

"Quand le physicien rêve, il n'est qu'un néant fécond."
d'après **Victor Hugo** (1802-1885)

REMERCIEMENTS

Une thèse est un long parcours solitaire, mais la mienne est également jalonnée de nombreuses personnes qui ont contribué plus ou moins directement à l'aboutissement de ce travail. Je ne peux nommer individuellement toutes ces personnes, que je remercie infiniment, mais je souhaite ici remercier particulièrement quelques-unes d'entre elles dont le rôle est central.

Je remercie tout d'abord Yves Bellouard et Jean-Pierre Wolf, qui ont accepté de rapporter ce manuscrit : merci pour leur lecture patiente et le temps qu'ils ont consacré à mon travail. Merci également à Fabien Quéré, Maxime Jacquot et John Dudley d'avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse.

Les hasards de la vie donnent des coïncidences troublantes : il me faut remercier ici trois François qui ont beaucoup compté dans mon parcours scientifique. Tout d'abord François Vernotte qui m'a accueilli durant mon stage de 3^{e} à l'observatoire de Besançon et qui m'a inculqué le goût de la physique et le rêve de devenir chercheur ; puis François Lachambre qui a mené le club scientifique du lycée Viette de Montbéliard et qui m'a montré que la science au quotidien pouvait être source perpétuelle d'émerveillement et de curiosité ; enfin François Courvoisier, qui m'a fait confiance pour mon stage de master puis pour ce travail de thèse, et qui m'a transmis la rigueur, la persévérance et l'excitation qui nous poussent à faire de la belle physique.

En parlant de François Courvoisier, je ne le remercierai jamais assez pour la qualité de son encadrement, pour tout ce qu'il m'a transmis, pour son soutien dans mon travail, pour son écoute quant à mes difficultés et doutes, pour la confiance mutuelle construite avec le temps et enfin pour cette relation amicale. Merci à lui de m'avoir laissé écrire librement ce manuscrit, tout en apportant ses remarques et conseils précieux pour me remettre sur le droit chemin mais sans pour autant me contraindre. C'est toujours un vrai plaisir que de travailler avec quelqu'un d'aussi ouvert et disponible. Il m'a mené progressivement vers l'affirmation de moi et mon éclosion en tant que futur-chercheur à part entière, en m'amenant à donner le meilleur de moi-même. Grâce à lui je peux dire en toute sincérité : "Je sers la science et c'est ma joie". Merci.

Un grand merci aux collègues de l'équipe OPTO avec qui j'ai pu travailler de manière directe : Valérie Fauvez, pour son sens de l'accueil et son enthousiasme, et pour son investissement dans la vie de l'équipe. Luc Froehly, pour sa gentillesse et le partage de sa passion des sciences et de la belle optique. Remo Giust, pour ses conseils avisés, son écoute, et son regard critique qui m'a poussé à justifier TOUS mes résultats et en plus à aimer ça. Benoît Morel et Kazem Ardaneh forment notre duo de numériciens, qui a travaillé sur les codes de simulation d'interaction laser-matière servant à la modélisation des expériences que j'ai pu réaliser. Ils ont alimenté activement les discussions sur les interprétations fondamentales des résultats expérimentaux. Luca Furfaro, le couteau suisse

italien, qui s'est toujours plié en quatre pour m'aider et me faire aller à l'efficacité. Il a permis de converger rapidement vers des solutions techniques efficaces et durables, qui sont encore à l'œuvre aujourd'hui, et il a considérablement contribué à la fiabilisation des expériences. Cyril Billet, pour avoir pris soin du laser et conçu/réalisé des éléments centraux de mon expérience. John Dudley a été un conseiller scientifique précieux pour ce travail et un relecteur attentif des articles que j'ai pu rédiger. Pierre-Ambroise Lacourt, qui le premier m'a emmené dans un labo d'optique et qui m'a dit faire de la physique pour la meilleure raison du monde : "parce que ça m'amuse".

Merci aux doctorants et post-doctorants que j'ai côtoyés et avec qui j'ai beaucoup appris : Chen, Abel, Ludovic, Ismail, Jesus, Benoît, Gaurav, Vetti et Mostafa. Thanks guys, I deeply enjoyed the time we spent together. Je souhaite une bonne continuation à Benoît et Mostafa pour la suite de leur thèse !

Merci aux compagnons de labo qui m'ont accompagné au quotidien, pour leur humour, les discussions à rallonge, les pauses café, les sandwichs, les débats et les blagues (du lion). La vie au labo n'aurait pas été si belle sans eux, je leur dois beaucoup. Ils sont nombreux et je ne peux tous les citer, mais un merci particulier à Louis, Florent, Solveig, Cyril, Aurore, Sébastien, Alexis, Laurent, Franck... et tout le reste de la bande de la pause café !

Parlant de la pause café : à ceux qui m'ont défié de glisser discrètement une contrepèterie dans mon manuscrit, sachez que c'est chose faite puisque pas moins de trois s'y trouvent. En glisser une dans le titre n'a pas été possible : il n'est pas facile de faire des contrepèteries lorsqu'on évoque les faisceaux de Bessel, les axicons et le monde conique en général... à bon entendeur.

Une pensée particulière pour Antoine et Saad, mes deux frères de cœur, avec qui nous nous suivons depuis la première année de licence : nous partagions alors déjà l'ambition d'un jour soutenir notre thèse en physique et nous y voilà ! Sans vous, votre amour, votre goût conjoint pour la φ et la μ-sique, je pense que mon parcours aurait été bien différent. Merci d'être là. Pour tout.

Un merci amical à Hind et Matthieu de *La Citronnade*, qui m'ont nourri, accueilli et encouragé pendant de nombreuses heures de rédaction, le tout dans une atmosphère chaleureuse, confortable et bienveillante. Merci les citrons !

Merci aux copains musiciens de l'orchestre universitaire, du groupe The Barking Sheep et de la compagnie l'Allée des Cerisiers : plus que de la musique, nous avons partagé des moments de vie intenses qui m'ont donné du baume au cœur depuis ma première année de licence jusqu'à aujourd'hui. Mille mercis à Chouquette, Louis, J-M, Violaine, Aline, Étienne, Yann, Loïc et Pauline, Ben et Lisa, et Mehdi, pour leur soutien constant durant ces années de thèse !

La musique occupe une place centrale dans ma vie et par conséquent aussi dans ma thèse. Outre les musiciens écoutés en salle d'expérience, merci aux compositeurs et interprètes suivants, qui m'ont accompagné, guidé, soutenu et sans qui la rédaction de ce travail aurait été bien plus pénible : Maurice Ravel, Gustav Mahler, Gustav Holst, Francis Poulenc, Johann Sebastian Bach, Philip Glass, Steve Reich, Johann Johansson, Joe Hisaishi, Jan Vanek, Andy McKee, Jacob Collier, Ibrahim Maalouf, Bill Laurance, Lydian Collective, Snarky Puppy, Genesis, Pink Floyd, Kyle Eastwood, Gotan Project,

Stuart McCallum, The Cinematic Orchestra, Hidden Orchestra, Nils Frahm, Gogo Penguin, Zero7, Pomplamoose...

Les mots me manquent pour évoquer ma famille... Leur confiance, leur soutien, leur amour inconditionnels sont mes biens les plus précieux. Merci, je me sens extrêmement privilégié de vous avoir. Pensées émues à ceux qui nous manquent.

Et que dire pour remercier ma merveilleuse Coralie ? Mon soutien du quotidien qui m'accompagne dans ce tortueux chemin de la thèse et dans les montagnes russes de la vie... Elle est toujours là pour moi et est ma plus fidèle supporter ! Merci du fond du cœur. Tu rends chaque jour un peu plus beau quand je suis à tes côtés !

Merci enfin au lecteur de ces lignes, pour l'intérêt qu'il porte à ce sujet qui m'est cher : par sa lecture, il fait prendre vie à ce manuscrit et lui donne son véritable sens.

CONTRIBUTIONS SCIENTIFIQUES

Sur la couverture de ce manuscrit ne figure que mon nom comme auteur de ce travail : l'essentiel est effectivement de ma propre contribution, mais il me semble juste de distinguer les contributions de chacun et d'ici rétablir la véritable liste des auteurs. Ce travail n'aurait jamais pu aboutir sans les apports scientifiques des personnes suivantes :

- CYRIL BILLET s'est occupé quotidiennement des équipements laser, de leur installation et de leur maintenance. Cyril a également conçu et réalisé le compresseur à prisme, dont il est question dans le chapitre 2.
- LUC FROEHLY a modélisé le-dit compresseur, permettant d'effectuer sous Zemax^{TM} les calculs de dispersion angulaire discutés dans le chapitre 2. Luc et moi-même avons conjointement réalisé l'algorithme et le code d'extraction numérique de l'indice de réfraction du chapitre 3.
- REMO GIUST a œuvré sur la partie théorique de ce travail de thèse. Ce manuscrit lui doit de nombreux points parmi lesquels : l'optimisation de la technique de *transient grating* du chapitre 2, le code de simulation de l'autoréflexion d'une onde sur un barreau de plasma du chapitre 3 et la conception optique du dispositif à 3 axicons du chapitre 5.
- CHEN XIE a réalisé une partie importante de l'interfaçage instruments-ordinateur-utilisateur de l'expérience centrale de cette thèse (chapitres 2-3). Chen a également travaillé sur la modélisation théorique de la technique du *transient grating* du chapitre 2.
- JESUS DEL HOYO et LUDOVIC RAPP ont participé aux étapes préliminaires du système à 3 axicons (chapitre 5). Jesus a posé les premiers jalons vers la découpe de verre épais en réalisant un clivage de verre de 5 mm après plusieurs passages sous le laser, que j'ai pu étendre à 10 mm après un simple passage par la suite.
- Enfin, FRANÇOIS COURVOISIER a dirigé les recherches et donné l'orientation scientifique de l'ensemble de ce travail. Il est notamment l'auteur des idées principales à l'origine de cette thèse et il a assuré la supervision quotidienne durant la conception, l'implémentation, l'exploitation et l'interprétation des expériences et résultats présentés dans les chapitres à suivre.

J'ai réalisé l'ensemble des expériences, mené les campagnes de mesures et formulé les interprétations présentées dans la suite de ce document (sauf mention contraire). J'y emploie volontairement la première personne du pluriel pour inclure l'ensemble de mes collègues co-auteurs, cependant les interprétations formulées ici n'engagent que moi.

SOMMAIRE

I Dynamique de l'interaction laser-matière résolue en temps 5

1 Interaction laser-matière et faisceaux de Bessel 7

1.1 Mécanismes d'ablation laser . . . 7

1.1.1 Confinement de l'interaction laser-matière pour les impulsions ultrarapides . . . 7

1.1.2 Cas des milieux transparents . . . 9

1.1.3 Ionisation en régime femtoseconde . . . 9

1.2 Mise en forme spatiale et faisceaux non-diffractants . . . 11

1.2.1 Faisceaux de Bessel . . . 12

1.2.2 Application des faisceaux de Bessel . . . 13

1.2.3 Modulateur de phase spatiale . . . 15

1.2.4 Optimisation du profil longitudinal . . . 18

1.3 Un processus à la modélisation incomplète . . . 20

1.4 Caractérisation de l'interaction laser-matière . . . 22

1.4.1 Approches phénoménologiques . . . 22

1.4.1.1 Caractérisation post mortem . . . 22

1.4.1.2 Inspection in situ . . . 23

1.4.1.3 Imagerie résolues en temps . . . 24

1.4.2 Plasma, ablation et imagerie pompe-sonde . . . 26

1.4.2.1 Configuration d'imagerie . . . 27

1.4.2.2 Méthodes de mesure optique . . . 28

1.5 Approche proposée : expérience pompe-sonde interférométrique . . . 32

2 Expérience pompe-sonde : diagnostic in situ 35

2.1 Introduction . . . 35

2.1.1 Contraintes à la réalisation d'une expérience pompe-sonde . . . 36

2.1.2 Délai absolu dans une expérience pompe-sonde hétérodyne . . . 38

2.1.3 L'optique non-linéaire au service de la synchronisation . . . 39

2.1.3.1 Interaction non-linéaire d'ordre 2 . . . 39

2.1.3.2 Interaction non-linéaire d'ordre 3 . . . 39
2.1.3.3 Intercorrélation pompe-sonde . . . 41
2.1.4 Approche proposée . . . 41
2.2 Réseau transitoire d'indice par effet Kerr . . . 42
2.2.1 Effet Kerr optique . . . 42
2.2.2 Cas pompe-sonde : effet Kerr croisé . . . 44
2.2.3 Réalisation d'un réseau d'indice transitoire . . . 45
2.2.4 Expression du signal diffracté . . . 48
2.2.5 Mesure du signal diffracté . . . 49
2.3 Diffraction sur le réseau d'indice transitoire . . . 51
2.3.1 Influence de l'énergie de la pompe . . . 51
2.3.2 Influence de la polarisation . . . 51
2.4 Synchronisation pompe-sonde . . . 54
2.4.1 Obtention d'un critère objectif pour $\tau = 0$ . . . 54
2.4.2 Sensibilité de la technique à la qualité des optiques . . . 55
2.5 Optimisation de la compression de l'impulsion sonde . . . 56
2.5.1 Principe de la mesure . . . 56
2.5.2 Optimisation et durée de l'impulsion sonde . . . 57
2.6 Caractérisation spatio-temporelle de l'impulsion sonde . . . 59
2.7 Conclusions et perspectives . . . 62

3 Étude du plasma généré par impulsions ultra-brèves 63
3.1 Imagerie pompe-sonde interférométrique . . . 64
3.1.1 Mesure indirecte de la densité du plasma : principe . . . 64
3.1.1.1 Équation de propagation en milieu inhomogène . . . 64
3.1.1.2 Contribution du plasma . . . 65
3.1.1.3 Vers un modèle simplifié . . . 66
3.1.1.4 Approche proposée : Helmholtz semi-homogène . . . 66
3.1.1.5 Densité du plasma et propagation . . . 67
3.1.1.6 Un modèle aux limites connues . . . 67
3.1.2 Restitution de l'indice complexe lié au plasma . . . 68
3.1.2.1 Amplitude complexe de la sonde à partir de l'hologramme 69
3.1.2.2 Algorithme de démodulation de l'amplitude complexe . . . 71
3.1.2.3 Indice de réfraction reconstruit . . . 74
3.1.3 Implémentation expérimentale . . . 76

3.1.3.1 Sondes interférométriques . . . 76
3.1.3.2 Compensation de la dispersion . . . 77
3.1.3.3 Faisceau de Bessel utilisé . . . 78
3.1.3.4 Stabilité de l'expérience . . . 79
3.1.4 Discussion sur les limites de notre méthode . . . 81
3.1.4.1 Bruit d'indice . . . 81
3.1.4.2 Cross-talk sur l'indice . . . 81
3.1.4.3 De l'importance de la stabilité de pointé . . . 82
3.1.4.4 Limites liées à la quantité de données . . . 82
3.2 Dynamique d'interaction laser-matière . . . 83
3.2.1 Observations : dynamique temporelle multi-échelle . . . 83
3.2.1.1 Dynamique sub-picoseconde . . . 83
3.2.1.2 Dynamique nanoseconde . . . 87
3.2.2 Grandeurs d'intérêt . . . 89
3.2.2.1 Caractéristiques du plasma . . . 89
3.2.2.2 Célérité des ondes mécaniques . . . 91
3.3 Densité du plasma généré . . . 92
3.3.1 Réflexion/réfraction/transmission conique sur le plasma . . . 93
3.3.1.1 Principe de l'expérience . . . 93
3.3.1.2 Décomposition en série de fonctions de Bessel . . . 94
3.3.1.3 Modélisation par approche multi-couche . . . 94
3.3.1.4 Approche empirique . . . 97
3.3.2 Génération de seconde harmonique sur le plasma . . . 97
3.3.2.1 Imagerie du signal de SHG . . . 99
3.3.2.2 Angle d'émission de SHG . . . 100
3.3.2.3 Double impulsion pompe . . . 101
3.4 Conclusion et perspectives . . . 102

II Applications à la découpe du verre 105

4 Nanocanaux elliptiques pour clivage amélioré 113
4.1 Introduction . . . 113
4.2 Réalisation de nanocanaux elliptiques . . . 115
4.2.1 Montage expérimental et filtrage de Fourier . . . 115
4.2.2 Caractérisation des faisceaux de Bessel elliptiques . . . 117

4.2.3 Caractérisation des nanocanaux induits . . . 118
4.3 Amélioration des performances de clivage de verre mince . . . 119
4.3.1 Mesures de ténacité : banc de flexion . . . 119
4.3.2 Élimination des biais expérimentaux . . . 119
4.3.3 Trois situations d'usinage . . . 121
4.3.4 Ténacité de séparation . . . 121
4.3.5 Ténacité transverse . . . 124
4.4 Comportement de fracture à l'échelle microscopique . . . 125
4.4.1 Approche numérique : éléments finis . . . 126
4.4.2 Influence des lobes latéraux . . . 129
4.5 Conclusions et perspectives . . . 130

5 Découpe de verre de grande épaisseur 133
5.1 Vers de nouvelles géométries . . . 133
5.1.1 Limites des systèmes télescopiques . . . 134
5.2 Système à trois axicons . . . 136
5.2.1 Une nouvelle disposition pour s'affranchir des limites en énergie . . . 138
5.2.2 Faisceaux de Bessel à hauts angles, longue distance de travail et longue zone d'interaction . . . 139
5.2.3 Implémentation expérimentale et gestion des imperfections . . . 139
5.3 Caractérisation du faisceau de Bessel . . . 141
5.3.1 Système d'imagerie . . . 142
5.3.2 Régimes linéaire et non-linéaire . . . 143
5.3.3 Formation de plasma dans l'air à énergie maximale . . . 144
5.4 Application au clivage du verre de grande épaisseur . . . 145
5.4.1 Démarche et preuve de principe . . . 145
5.4.2 Qualité des bords clivés . . . 147
5.4.3 Rugosité des bords clivés . . . 149
5.4.4 Démonstration de principe : découpe de carrés . . . 150
5.5 Conclusions et perspectives . . . 151

III Conclusion 153

6 Conclusion générale 155
6.1 Bilan . . . 155
6.2 Perspectives . . . 157

A Méthode d'observation des nanocanaux par la tranche 159

B Détails de calcul : système à 3 axicons 163

B.1 Angle du faisceau de Bessel dans l'air : θ_f 164

B.2 Distance de travail : d_w 164

B.3 Longueur du faisceau de Bessel : L_B 166

C Articles publiés pendant la thèse. 167

C.1 Nanocanaux elliptiques à haut facteur de forme. 168

C.2 Nanocanaux elliptiques pour un clivage optimal. 172

C.3 Clivage de verre de grande épaisseur. 177

C.4 Revue des activités de l'équipe pour The Laser User. 181

LISTE DES NOTATIONS

α	Chap. 2 - Angle du réseau d'indice par rapport à l'axe optique
α	Chap. 4 - Premier coefficient de Weibull, associé à la dispersion de déflexion
α	Chap. 5 - Angle des deux premiers axicons
α_{SLM}	Chap. 2 - Angle du réseau d'indice primaire (au niveau du SLM) par rapport à l'axe optique
β	Chap. 4 - Second coefficient de Weibull, associé à la déflexion typique de fracture
β	Chap. 5 - Angle du dernier axicon
Δz	Chap. 3 - Distance séparant deux plans d'imagerie
δ et Δ	Chap. 2 - Déplacements de l'échantillon et du réseau d'indice
ℓ	Chap. 2 - Longueur du réseau d'indice
ϵ	Chap. 4 - Tenseur des déplacements/déformations
γ	Chap. 5 - Angle du faisceau dans le dernier axicon
κ	Chap. 4 - Facteur de concentration de contrainte
Λ	Chap. 2 - Pas du réseau d'indice
$\lambda_{p,s}$	Longueur d'onde du faisceau pompe/sonde
$\mathbf{D}$	Champ de déplacement électrique, sous forme vectorielle
$\mathbf{E}$, $\mathcal{E}$, $E(t)$	Champ électrique, sous forme vectorielle, d'amplitude complexe et de composante cartésienne en un point donné
$\mathbf{H}$	Excitation magnétique, sous forme vectorielle
$\mathbf{P}$, $\mathcal{P}$, $P(t)$	Polarisation induite au sein d'un matériau, sous forme vectorielle, d'amplitude complexe et de composante cartésienne en un point donné
$\mathcal{H}$	Chap. 3 - Transformée de Hilbert
μ_0, μ_r	Perméabilité magnétique du vide, perméabilité magnétique relative
$\omega_{p,s}$	Pulsation optique du faisceau pompe/sonde
ρ	Chap. 3 - Densité de charges libres du plasma
ρ_{cr}	Chap. 3 - Densité critique
Σ	Chap. 2 - Intensité du signal sonde diffracté sur le réseau d'indice
σ	Chap. 4 - Tenseur des contraintes
τ	Retard relatif entre les impulsions pompe et sonde

τ_c Chap. 1 - Constante de temps du modèle de Drude

$\tau_{p,s}$ Durée de l'impulsion pompe/sonde

θ Demi-angle de croisement des faisceaux du biprisme ou du faisceau de Bessel

θ_f Chap. 5 - Angle conique du faisceau de Bessel après le dernier axicon

θ_{SLM} Demi-angle de croisement des faisceaux du biprisme ou du Bessel primaire (au niveau du SLM)

$\varepsilon, \varepsilon_r$ Permittivité du vide, permittivité relative

c Vitesse de la lumière dans le vide

$c_{compression}, c_{cisaillement}$ Chap. 3 - Célérité des ondes acoustiques dans le milieu

d Chap. 5 - Distance entre les deux premiers axicons

D_p Chap. 2 - Distance de séparation au sein d'une paire de prismes dans le compresseur à prismes

d_p Chap. 2 - Distance d'insertion des prismes dans le compresseur à prismes

d_w Chap. 5 - Distance de travail du montage à 3 axicons

E Chap. 4 - Module d'Young

$E_{p,s}$ Énergie par impulsion pour l'onde pompe/sonde

FB Chap. 4 - Faisceau de Bessel

FBE Chap. 4 - Faisceau de Bessel Elliptique

FIB *Focused Ion Beam*, faisceau d'ions focalisé

$FROG$ Chap. 2 - Frequency-Resolved Optical Gating

$FWHM$ Pleine largeur à mi-hauteur (*Full Width at Half Maximum*)

I Intensité optique

I_{DATA}/I_{REF} Chap. 3 - Images interférométriques signal et référence

J_n Fonction de Bessel de première espèce et d'ordre n

L_B Chap. 5 - Longueur du faisceau de Bessel

M Grandissement de télescope/microscope

MEB Microscopie électronique à balayage

n et Δn Indice de réfraction et variation d'indice de réfraction

n_0 Indice de réfraction linéaire

n_2 Indice de réfraction non-linéaire induit par effet Kerr

n_{ax} Chap. 5 - Indice de réfraction des 3 axicons

NA Ouverture numérique

r Coordonnée radiale

RMS Chap. 4 - Rugosité moyenne quadratique

SLM	Modulateur de Phase Spatiale (*Spatial Light Modulator*)
STE	Self-Trapped Excitons, excitons auto-piégés
v_g	Vitesse de groupe
w_0	Chap. 5 - Rayon du faisceau à l'entrée du montage à 3 axicons
x	Axe transverse à l'axe optique, vertical dans le référentiel du laboratoire
y	Axe transverse à l'axe optique, horizontal dans le référentiel du laboratoire
z	Axe optique

INTRODUCTION GÉNÉRALE

L'interaction d'une impulsion femtoseconde avec un milieu transparent est un processus complexe qui implique un grand nombre de phénomènes [1] induisant de profondes modifications du milieu lorsque l'énergie de l'impulsion est importante. Ces modifications peuvent être durables, sous la forme d'une modification permanente de l'indice de réfraction ou encore de la formation d'une cavité dans le milieu, mais aussi transitoires. Parmi ces phénomènes transitoires, on trouve l'ionisation du milieu pour les zones de fortes intensités [2, 3], qui permet la formation d'un plasma dense agissant comme un milieu fortement absorbant et réalisant un transfert d'énergie important de l'impulsion laser vers le milieu [4, 5].

Les effets non-linéaires à l'origine de ce plasma et du fort couplage laser-matière sont toutefois sources de distorsions spatio-temporelles de l'impulsion [6] : les faisceaux spatialement gaussiens ne sont pas des solutions stables de l'équation de propagation non-linéaire [7]. En revanche, les faisceaux non-diffractants tels que les faisceaux de Bessel [8, 9] possèdent une stabilité face aux effets non-linéaires dès lors que leur angle de focalisation est suffisant [10, 11]. Du fait de leur propagation stable, du confinement transverse de l'intensité dans leur lobe central et de leur longue extension le long de l'axe de propagation [12], ils permettent d'induire des nanocanaux à haut rapport de forme dans les milieux transparents en régime femtoseconde par impulsions laser uniques [13, 14].

Le contrôle du dépôt d'énergie dans le milieu par faisceaux de Bessel demeure cependant un aspect fondamental non maîtrisé : la modélisation du phénomène d'absorption de l'impulsion femtoseconde par le milieu reste encore incompatible avec les observations expérimentales [15, 16].

Ce travail de thèse se positionne de manière expérimentale pour le contrôle du dépôt d'énergie d'une impulsion laser femtoseconde par mise en forme spatiale du faisceau et mesure de la dynamique du mécanisme d'interaction laser-matière. En effet la maîtrise du dépôt d'énergie est conditionnée conjointement par la maîtrise du profil spatial d'intensité optique effective dans le milieu, et la connaissance de l'efficacité de couplage via le plasma en fonction de l'intensité.

La question du contrôle de l'intensité effective est résolue grâce aux faisceaux de Bessel dont le profil d'intensité reste stable même en régime de filamentation lorsque l'angle de focalisation est assez fort [10]. La question de la distribution et de la dynamique du plasma reste en revanche toujours en suspens. Dans ce manuscrit, nous présentons les méthodes mises en œuvre pour la mesure résolue en temps et espace du profil de densité du plasma formé par une impulsion femtoseconde mise en forme de faisceau de Bessel. Le processus de formation des nanocanaux est également étudié afin de relier la forme du nanocanal observée à la distribution du plasma observé dans les premiers instants de la dynamique.

Notre travail sur l'interaction laser-matière en régime femtoseconde dans le cas des faisceaux de Bessel se divise en deux axes de travail indépendants. Le premier est orienté sur l'interaction laser-plasma du point de vue fondamental et la caractérisation de cette interaction ; le second est davantage tourné vers le monde industriel et applicatif de l'usinage laser femtoseconde, et se penche sur deux améliorations significatives des techniques de découpe du verre à haute vitesse.

Bien que ces deux axes reposent sur deux approches différentes, ils concernent précisément le même mécanisme d'interaction. La principale différence est que notre premier axe concerne le régime de tirs lasers uniques, pris un à un pour des mesures *in situ* et *au cours* de la dynamique d'ablation, tandis que le second axe se focalise sur l'effet *post mortem* d'une assemblée de tirs uniques sur les propriétés mécaniques globales d'un échantillon.

Premier axe : Dynamique de l'interaction laser-matière résolue en temps

Nous nous intéressons au processus de formation de nanocanaux par faisceaux de Bessel, et particulièrement à la dynamique sub-picoseconde lors du couplage de l'impulsion avec le milieu et la formation du plasma. Nous réalisons une expérience pompe-sonde dont le but est de mesurer la distribution des modifications d'indice induites par le plasma, résolue en temps et à trois dimensions.

Avant de nous lancer dans la présentation de ces travaux de thèse, nous établissons un rappel de l'état de l'art concernant les phénomènes d'interaction laser-matière, particulièrement pour le régime femtoseconde et le cas des faisceaux de Bessel. Le chapitre 1 présente les principaux phénomènes à l'œuvre et la génération de plasma dans les milieux transparents par impulsions femtoseconde. Nous introduisons les faisceaux de Bessel, leurs propriétés, les méthodes expérimentales utilisées pour leur mise en forme et leurs applications. Nous présentons la méthode choisie pour leur génération dans cette première partie, basée sur un modulateur de phase spatiale dont nous présentons les avantages et inconvénients. Nous établissons un tour d'horizon des méthodes utilisées pour l'étude des processus d'interaction laser-matière et nous présentons plus en détail l'approche pompe-sonde interférométrique choisie pour ce travail.

Le chapitre 2 est dédié au développement d'une solution technique pour la synchronisation des impulsions pompe et sonde : la présence de deux impulsions impose de déterminer le délai relatif entre les deux impulsions. Nous exploitons les propriétés optiques du milieu à sonder pour établir un couplage entre les impulsions pompe et sonde de manière à retrouver le délai de superposition des impulsions. L'impulsion pompe permet d'induire dans le milieu des effets non-linéaires transitoires, qui affectent la propagation de l'impulsion sonde dans le milieu lorsque le délai entre impulsions est de l'ordre de la durée des impulsions.

La méthode utilisée dans ce travail de thèse permet non seulement de retrouver le délai nul, donnant un instant de référence sur la dynamique à étudier, mais aussi de caractériser par intercorrélation le profil d'intensité de l'impulsion sonde grâce à la connaissance *a priori* de celui de l'impulsion pompe. Nous parvenons à établir une caractérisation afin d'optimiser d'imagerie pompe-sonde, et aussi à visualiser le *pulse*

front tilt et à l'éliminer, dans le milieu même à étudier.

Dans le chapitre 3, nous nous tournons vers l'expérience d'imagerie pompe-sonde constituant le point central de ce travail de thèse. Nous mesurons les variations de l'indice de réfraction local, induites par le plasma formé à l'aide d'une technique holographique. Plus précisément, la technique donne accès à l'amplitude complexe de l'onde sonde. Grâce à une mesure en plusieurs plans, nous pouvons approximer la propagation de l'onde sonde dans le milieu perturbé par la pompe et mesurer le profil d'indice dans la limite des hypothèses établies sur l'équation de propagation. La distribution d'indice est intrinsèquement liée au profil de densité du plasma : en effectuant cette mesure pour différents délais pompe-sonde, nous avons alors accès à la cartographie du plasma à trois dimensions et résolue en temps.

En complément de cette technique de mesure, nous avons également mis en place deux mesures utilisant le système expérimental utilisé pour l'imagerie pompe-sonde. La première utilise une approche empirique par comparaison de l'expérience à la simulation numérique : nous mesurons le signal d'auto-réflexion de l'impulsion pompe sur le plasma formé et en déduisons une valeur approchée de la densité atteinte au cœur du plasma. Nous montrons que la densité critique peut être atteinte même lorsque l'énergie de l'impulsion mise en forme de faisceau de Bessel ne permet pas encore la formation d'un nanocanal.

La seconde concerne les propriétés non-linéaires du plasma, et donne la première preuve expérimentale de génération d'un signal de seconde harmonique sur un plasma induit à l'intérieur d'un solide par une impulsion femtoseconde. Ce phénomène témoigne de la complexité du phénomène d'interaction laser-plasma à ces intensités.

L'ensemble de ces informations nous permet de donner une prometteuse première série de mesures sur le profil pris par le plasma généré, et de comparer ces premiers résultats avec le modèle courant d'interaction entre impulsions laser ultrabrèves et plasma dans les milieux transparents.

Deuxième axe : Applications à la découpe du verre haute vitesse

Cette seconde partie s'intéresse ici à l'effet d'une collection de nanocanaux sur les propriétés mécaniques d'une lame de verre. Nous introduisons brièvement les enjeux portant sur la découpe du verre à la fin des années 2010, et nous mettons en avant deux problèmes centraux rencontrés par l'industrie dans la quête vers des techniques de découpe adaptées à la production de masse.

L'inscription de nanocavités les unes à la suite des autres permet de fragiliser un plan dans le volume d'un milieu transparent et de faire fracturer par clivage l'échantillon [17]. Les faisceaux de Bessel ont déjà démontré être de bons candidats pour le clivage des milieux transparents amorphes [18] et cristallins [19] par l'induction de nanocanaux fragilisant un plan sur l'ensemble de la hauteur de l'échantillon. La géométrie cylindrique des nanocanaux induits par faisceaux de Bessel conduit à une distribution de contraintes isotrope, qui par définition ne privilégie pas de direction de fracture. Le clivage repose

justement sur la présence d'un axe privilégié pour guider la fracture, et le clivage par faisceaux de Bessel conduit par conséquent à une fracture peu guidée et limitant donc la précision de ce type de découpe.

Dans le chapitre 4, nous proposons alors de travailler sur l'optimisation du profil spatial des faisceaux de Bessel en brisant la symétrie cylindrique : nous réalisons un quasi-faisceau de Bessel dont le cœur est elliptique et qui possède les mêmes propriétés non-diffractantes que les faisceaux de Bessel. Ces faisceaux de Bessel elliptiques autorisent la formation de nanocanaux à haut rapport de forme dont la section est elliptique. Nous comparons les comportements mécaniques d'échantillons minces de verre après ablation par faisceaux de Bessel cylindriques et elliptiques, et nous montrons une amélioration significative des performances de clivage pour le profil elliptique. Cette amélioration concerne aussi bien la facilité et la qualité de guidage de la fracture (sub-micronique) que la robustesse des pièces après découpe.

Le second problème auquel le clivage par faisceaux de Bessel se heurte est lié à l'épaisseur du milieu à cliver : les nanocanaux doivent s'étendre sur l'ensemble de cette épaisseur et les dispositifs optiques de mise en forme spatiale ne permettent pas de réaliser le compromis entre les fortes énergies et les hauts angles nécessaires à l'obtention de tels nanocanaux. Nous proposons dans le chapitre 5 l'utilisation d'un nouveau dispositif optique à 3 axicons, qui autorise la formation d'un faisceau de Bessel à haut angle (26°) sur une longueur de plus de 10 mm dans le verre et l'emploi d'impulsions multi-millijoule (voire joule). Nous réalisons alors la preuve de principe d'une découpe de verre épais en une seule passe sous le laser, pour des épaisseurs comprises entre 3 et 10 mm. Nous démontrons que ce type de clivage conduit à une haute qualité des bords clivés, avec une rugosité moyenne d'un micron.

Enfin nous dresserons des conclusions sur l'ensemble de ce travail, et proposerons des perspectives pour les recherches à venir.

I

DYNAMIQUE DE L'INTERACTION LASER-MATIÈRE RÉSOLUE EN TEMPS

1

INTERACTION LASER-MATIÈRE ET FAISCEAUX DE BESSEL

L'interaction laser-matière se produisant lors d'une opération d'usinage laser est en processus complexe impliquant un grand nombre de phénomènes physiques dont les échelles de temps sont très différentes. Ce chapitre présente ces principaux mécanismes et s'intéresse au cas particulier des matériaux transparents soumis à une excitation laser femtoseconde, en faisant un tour d'horizon de l'état de l'art à ce sujet. Les effets non-linéaires couplant l'impulsion avec le milieu sont très sensibles au profil d'intensité spatial du faisceau : nous discutons alors des possibilités de mise en forme du faisceau permettant un dépôt d'énergie contrôlable et stable. Nous abordons alors le cas des faisceaux de Bessel et de leur méthodes de formation.

Bien que leur utilisation pour l'ablation laser des milieux transparents remonte maintenant à une dizaine d'années, la modélisation du phénomène d'ablation par faisceau de Bessel pose problème, aussi bien sur l'aspect de couplage laser-matière via le plasma généré que pour le processus de formation de nano-cavités dans le milieu. Ce processus a déjà été étudié par le passé et après avoir présenté les techniques conventionnelles utilisées pour ces mesures, nous montrons qu'il subsiste encore une large zone d'ombre quant à la réelle distribution de plasma formé par un faisceau de Bessel femtoseconde. Nous proposons alors ici une expérience visant à observer la dynamique de formation des nano-cavités (depuis les phénomènes de formation du plasma jusqu'à la relaxation de l'énergie dans le milieu), que nous allions à une nouvelle méthode dans le but de mesurer *in situ* la densité du plasma et sa distribution spatio-temporelle.

1.1/ MÉCANISMES D'ABLATION LASER

1.1.1/ CONFINEMENT DE L'INTERACTION LASER-MATIÈRE POUR LES IMPULSIONS ULTRARAPIDES

Le processus d'ablation laser met en jeu à la fois un couplage du milieu avec l'impulsion laser, des phénomènes de transfert d'énergie au sein du milieu et des transitions de phase, jusqu'à arriver à la formation d'une cavité ou du moins à une modification durable du matériau considéré. Le choix de la durée d'impulsion est un paramètre important, conditionnant les mécanismes de transfert d'énergie entre l'impulsion et le milieu, ainsi que le type de transitions au sein du matériau. La figure 1.1 est un célèbre exemple de cet

effet et montre le comportement d'ablation d'un métal (acier) pour différentes durées d'impulsion. Nous pouvons constater une importante différence entre le régime des impulsions longues (nanoseconde et picoseconde) et les impulsions courtes (femtoseconde), concernant la morphologie de la zone ablatée qui, à mesure que la durée d'impulsion diminue, présente un profil plus régulier et même exempt de débris en régime femtoseconde.

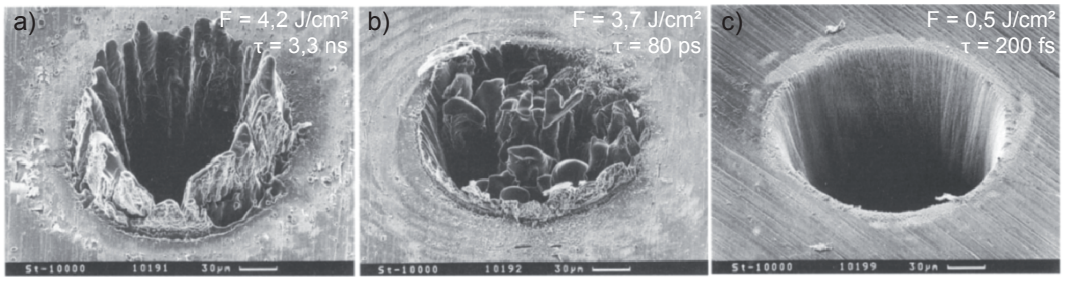

FIGURE 1.1 – Comparaison d'usinages dans l'acier par un laser à 780 nm, dont la durée d'impulsion varie entre (a) 3,3 ns, (b) 80 ps et (c) 200 fs (10^4 impulsions dans chaque cas). Le cas femtoseconde montre l'absence de matière fondue et une zone affectée restreinte par rapport aux deux autres cas. Image tirée de [20].

Les impulsions "longues" (typiquement dont la durée est supérieure à 100 ps) sont à l'origine de transitions de phase spatialement progressives. L'ablation est principalement produite par sublimation et par la pression exercée sur le matériau transitoirement en phase liquide, tandis qu'une large zone affectée thermiquement est visible sur le pourtour de la zone ablatée [20, 21].

Ces faibles gradients thermodynamiques s'expliquent par le transfert d'énergie des électrons excités par l'impulsion vers le milieu pendant toute la durée de l'impulsion : le temps caractéristique de couplage électron-phonon est inférieur à la durée de l'impulsion ($\approx$ 1-10 ps) [22]. Ainsi ce transfert permanent durant la durée d'impulsion garantit un équilibre thermodynamique local, chauffant le milieu jusqu'à la transition de phase. L'absorption de l'impulsion par les électrons reste alors principalement un processus linéaire [23].

En revanche, les mécanismes physiques mis en jeu pour les courtes durées d'impulsion sont assez différents, puisque la durée d'impulsion est courte devant le temps de couplage électron-phonon : l'excitation se produit hors équilibre thermique et les transferts d'énergie thermique se produisent alors une fois l'impulsion terminée. En conséquence, les gradients thermodynamiques deviennent plus forts, les zones fondues tendent à disparaitre et la transition spatiale entre les zones sublimées et laissées intactes tend à devenir abrupte en régime femtoseconde (figure 1.1). L'étendue de la zone thermiquement affectée se réduit également. Les impulsions femtoseconde sont alors préférées pour les usinages de précision à l'échelle micronique et la formation de nano-trous [24].

Les hautes intensités crêtes atteintes pour les impulsions femtoseconde sont à l'origine d'une absorption non-linéaire par le milieu, conduisant à un fort confinement de l'interaction [1] et à la formation d'un plasma dense se formant dans les zones de plus grande intensité. Ce plasma est composé de paires électrons/trous, voire de paires électrons/ions

suivant l'intensité du champ électrique de l'impulsion excitatrice ionisant le milieu. La présence de charges libres permet une absorption devenant de plus en plus efficace à mesure que la densité du plasma croît [4, 5] : le plasma assure un couplage fort entre l'énergie optique incidente et le milieu ionisé.

1.1.2/ CAS DES MILIEUX TRANSPARENTS

L'ablation laser des milieux transparents par impulsions ultra-brèves concerne une assemblée de phénomènes dont les temps caractéristiques s'échelonnent sur plusieurs décades. Le schéma 1.2 illustre les phénomènes majeurs et les échelles de temps mises en jeu, pour une excitation par une impulsion laser femtoseconde. Nous pouvons distinguer trois grandes catégories dans ces phénomènes : les processus de création de charges libres, dont les temps caractéristiques sont au plus de l'ordre de la dizaine de picoseconde ; les processus de couplage avec le milieu qui établissent l'équilibre thermodynamique local ; et les processus de relaxation de l'énergie sous forme de transitions de phase et de diffusion thermomécanique.

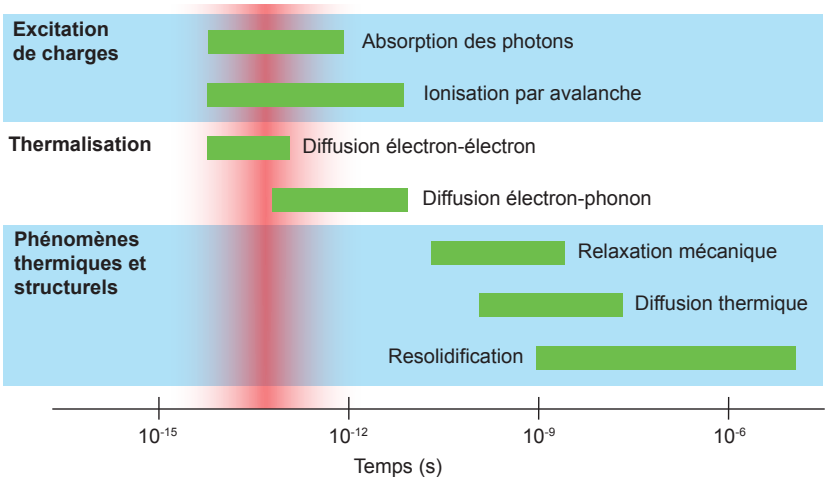

FIGURE 1.2 – Illustration des échelles de temps typiques mises en jeu pour l'ablation laser femtoseconde. La zone rouge représente l'échelle de temps liée au laser d'excitation (dans cette thèse, $\tau_p \approx 10^{-13}$ s). Schéma tiré et traduit de [1].

Nous nous intéressons au dépôt d'énergie par impulsions laser ultrabrèves, qui constitue le paramètre de contrôle unique à notre disposition pour un matériau donné.

1.1.3/ IONISATION EN RÉGIME FEMTOSECONDE

Le plasma généré par une impulsion femtoseconde dans un diélectrique provient d'une photo-ionisation du milieu et son mécanisme d'origine majoritaire dépend de la fluence de l'impulsion [25]. Un modèle relativement simple pour décrire l'ionisation par une impulsion intense est le modèle de Keldysh :

$$W_{PI} = \frac{2\omega}{9\pi}\left(\frac{\omega m}{\hbar\sqrt{\frac{\gamma^2}{1+\gamma^2}}}\right)^{3/2} Q(\gamma, U_{BI}, \omega) \tag{1.1}$$

dans lequel W_{PI} est le taux de photo-ionisation, ω est la pulsation de l'impulsion, m la masse réduite d'un électron dans la bande de conduction, U_{BI} est la largeur de la bande interdite, Q est une fonction du milieu et des paramètres du laser et γ est le paramètre d'adiabaticité : $\gamma = \omega\sqrt{mU_{BI}}/qE$ (q, charge électrique ; E, enveloppe du champ électrique) [2, 7].

La loi de Keldysh englobe deux cas particuliers, suivant la valeur de γ. Lorsque $\gamma \gg 1$ (faibles intensités), l'ionisation se décrit comme une absorption multiphoton, se produisant lorsque la structure de bandes du milieu possède une bande interdite plus large que l'énergie d'un photon unique. La présence d'états virtuels permet alors à un électron de passer de la bande de valence à la bande de conduction par l'absorption simultanée de plusieurs photons. L'absorption de n photons rend ce phénomène sensible à l'intensité à la puissance n : en conséquence, l'absorption multiphoton localise fortement l'interaction avec le milieu, puisqu'elle n'est réservée qu'aux zones de grandes intensités [1]. Par exemple dans la silice fondue, la bande interdite s'étale sur 9 eV [7] : pour un laser à 800 nm (Ti:Saphir, 1,55 eV/photon), l'absorption simultanée de 6 photons permet l'ionisation d'un électron, et est donc proportionnelle à I^6.

Lorsque $\gamma \ll 1$ (hautes intensités), le régime d'ionisation tunnel devient prépondérant : le champ électrique est suffisant pour déformer la structure du puits de potentiel atomique et permettre à un électron de passer de la bande de valence à la bande de conduction par effet tunnel [6].

Les électrons libres formés par le front montant de l'impulsion sont en mesure d'absorber une partie du reste de l'impulsion. L'absorption est liée à l'effet de Bremsstrahlung inverse (littéralement, *rayonnement de freinage* inverse) [26] faisant monter les électrons dans la bande de conduction. S'ajoutent donc à la photo-ionisation des mécanismes collisionnels (figure 1.3) pouvant produire des phénomènes d'avalanche entrainant un transfert d'énergie par collision des électrons de haute énergie avec des électrons de la bande de valence et qui fait alors croitre la densité électronique. Ce processus à 3 corps prends du temps et a donc un impact plus faible sur la propagation des impulsions courtes (sub-picoseconde) [3, 27].

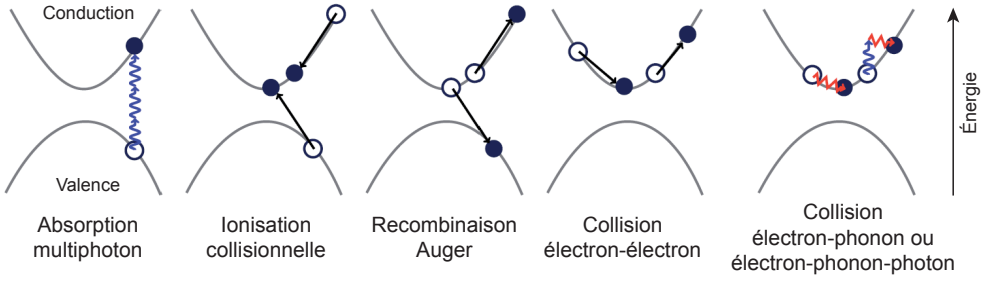

FIGURE 1.3 – Différents phénomènes d'interaction collisionnelle impliquant photon-phonon-électron, se produisant dans/entre les bandes de valence et de conduction. Image tirée de [28].

Une boucle de rétroaction positive se produit dans un plasma puisque l'augmentation de la densité de charges conduit à une meilleure absorption. Cependant à partir d'une densité ρ_{cr} nommée densité critique, le nombre de charges libres fait passer le comportement du milieu originellement diélectrique à celui d'un métal [29] : le plasma devient totalement réfléchissant à la longueur d'onde d'excitation et n'absorbe plus d'énergie de

l'impulsion.

Ce plasma possède un temps de vie qui dépend du milieu dans lequel il est formé. Dans la silice fondue, les charges libres du plasma sont rapidement transférées vers des états piégés (STE, Self Trapped Excitons) conduisant à un temps de décroissance caractéristique du plasma d'environ 150 fs [30, 31]. En revanche dans d'autres milieux comme le saphir le piégeage des excitons est bien moins efficace, conduisant à un long temps de vie du plasma.

La formation du plasma est intrinsèquement liée au profil de fluence de l'impulsion : le profil spatial de l'impulsion possède alors une influence considérable sur l'absorption locale et le dépôt d'énergie effectif. C'est ce couplage que nous allons étudier.

1.2/ MISE EN FORME SPATIALE ET FAISCEAUX NON-DIFFRACTANTS

La propagation d'une impulsion intense dans un milieu transparent est rendue complexe en raison des phénomènes non-linéaires, provenant de la réponse du milieu au champ électrique de grande amplitude. Dans la grande majorité des milieux transparents, le premier effet à agir sur la propagation est l'effet Kerr [32] qui tend à faire croître l'indice dans les régions de forte intensité optique. De ce fait il peut survenir un phénomène d'autofocalisation spatiale progressive de l'impulsion [33–35].

Lorsque l'intensité croît encore, le régime d'ionisation est atteint et on assiste à la formation d'un plasma dont l'effet est de diminuer localement la permittivité du milieu [36, 37]. En conséquence, le plasma agit comme une baisse d'indice de réfraction, et tend à défocaliser l'impulsion. De plus, la création rapide ($\approx$ 10-100 fs) et le long temps de vie du plasma (typ. dizaines de picosecondes) entraine une différence quant au milieu effectif vu par le front montant et le front descendant de l'impulsion : des distorsions temporelles de l'impulsion s'ajoutent alors aux distorsions spatiales.

Il existe un régime pseudo-stable bien que hautement non-linéaire, dans lequel les effets de focalisation et de défocalisation se compensent mutuellement [6, 7]. Ce régime est appelé filamentation en raison du profil pris par l'intensité du faisceau, prenant la forme des filaments pouvant s'étendre sur de grandes distances : plusieurs centaines de mètres dans l'air par exemple [6, 38, 39].

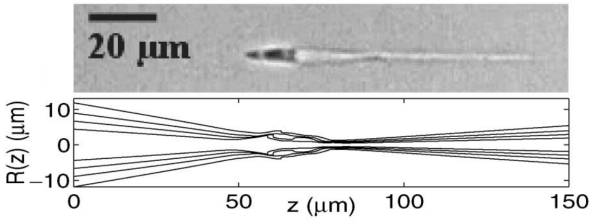

FIGURE 1.4 – Courbes d'iso-intensité pour un faisceau gaussien entrant en régime de filamentation et image au microscope optique de la zone modifiée dans la silice fondue, correspondant à ce profil d'intensité. Figure tirée de [7].

Dans ces conditions, un faisceau gaussien de grande énergie est sujet à de fortes distorsions spatiales non-linéaires dans les régimes de hautes intensités, et ne constitue pas un candidat idéal pour l'ablation laser femtoseconde [7] : même après focalisation par une lentille, l'intensité n'est pas concentrée en un point mais prend la forme de filaments dont la distribution est intrinsèquement liée à la distribution d'intensité incidente du faisceau [6] (figure 1.4). Cette formation de filaments sur les inhomogénéités du faisceau est alors difficilement contrôlable.

Les distorsions spatio-temporelles liées aux effets non-linéaires sont donc un frein au contrôle du dépôt d'énergie par laser dans les milieux transparents. Cependant, l'utilisation de nouvelles géométries optiques permet de nos jours de générer des faisceaux robustes à ces distorsions non-linéaires et par conséquent bien adaptés pour les interactions laser-matière en régime femtoseconde.

1.2.1/ FAISCEAUX DE BESSEL

Notre objet d'étude est une classe de faisceaux, nommés faisceaux de Bessel en raison de leur profil transverse suivant une fonction de Bessel. Bien que leur introduction comme faisceaux dont la distribution d'intensité est invariante et solution de l'équation de Helmholtz date de 1987 [8, 9], c'est pourtant dans les années 50 que l'*axicon*, élément optique à l'origine de ces faisceaux, a été présenté [40] pour des applications télescopiques et en microscopie. Un axicon est un élément optique à géométrie cylindrique, et de profil conique. La génération de faisceaux de Bessel est généralisable à des profils d'optiques non-coniques [41] : l'essentiel est le profil de phase appliqué, linéaire radialement, qui assure la transformation d'une onde plane incidente en un faisceau de Bessel. La phase accumulée en transmission au travers d'un axicon d'indice n_{ax} et d'angle γ s'écrit dans l'approximation paraxiale ($\gamma \leq 30°$) :

$$\Phi(r) = -2\pi(n_{ax} - 1)\frac{r \sin \gamma}{\lambda} \tag{1.2}$$

Il existe alors plusieurs méthodes pour obtenir un profil de phase conique et générer des faisceaux de Bessel [42, 43].

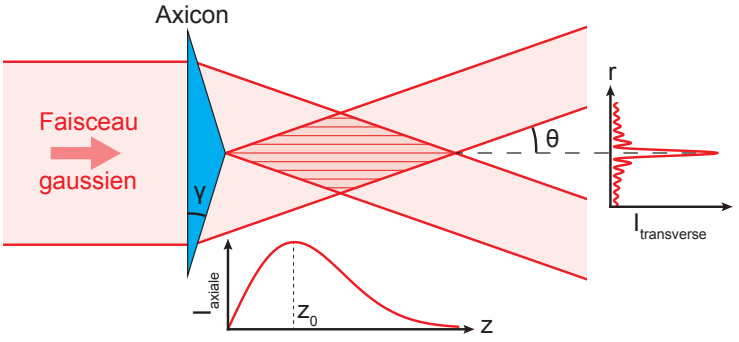

FIGURE 1.5 – Génération d'un faisceau de Bessel J_0 d'angle conique θ à partir d'un faisceau gaussien via un axicon d'angle γ. Le profil d'intensité axial I_{axial} suit la loi donnée par l'équation 1.3 et le profil d'intensité transverse une loi en $|J_0(r)|^2$.

Les faisceaux de Bessel naissent d'une interférence à ondes multiples en géométrie cylindrique (figure 1.5), dont la réduction à 2 dimensions consiste en une interférence à

deux ondes issue d'un biprisme de Fresnel. Le profil d'intensité d'un faisceau de Bessel suit une loi en $|J_0(r)|^2$ radialement, où J_0 est une fonction de Bessel de première espèce et d'ordre 0, et r est la position radiale.

Note : En pratique, la génération d'un faisceau de Bessel est réalisée à partir d'un faisceau le plus souvent gaussien, et le profil émergent de l'axicon est alors un faisceau de Bessel-Gauss. Par abus de langage, et du fait de l'inexistence pratique d'un réel faisceau de Bessel (dont l'énergie est par définition infinie, car non-intégrable), nous omettrons dans la suite de ce manuscrit la référence au caractère gaussien du faisceau incident. De même, ce travail ne portant que sur le cas des faisceaux de Bessel J_n pour $n = 0$, la mention "faisceau de Bessel" fera au final référence à un faisceau dont le profil d'intensité transverse suit une fonction $|J_0(r)|^2$.

L'ajout d'une phase orthoradiale (phase "vortex") au profil de phase radial induit par un axicon permet la génération de faisceaux de Bessel d'ordres supérieurs J_n qui possèdent tout comme pour l'ordre 0 des propriétés non-diffractantes et de stabilité aux effets non-linéaires, ce dont l'équipe d'accueil de ce travail de thèse a déjà témoigné [11, 44].

La génération de faisceaux de Bessel est également possible par une modulation d'amplitude dans l'espace de Fourier. Moins efficace d'un point de vue énergétique toutefois, cette méthode consiste à réaliser un filtrage annulaire dans le plan objet d'une lentille, qui par transformée de Fourier conduit à la formation d'un faisceau de Bessel [40, 45] dont l'angle conique est associé au rayon de l'anneau [46]. Cette méthode correspond à l'expérience historique de génération du premier faisceau de Bessel [8].

Le profil d'intensité d'un faisceau de Bessel J_0 selon l'axe de propagation z est conditionné par son angle conique θ ainsi que par le profil d'intensité gaussien incident sur l'élément permettant la mise en forme spatiale (waist w_0 et longueur d'onde λ). Le profil d'intensité le long de l'axe z est donné pour une puissance crête normalisée par [47] :

$$I(r = 0, z) = \frac{8\pi \sin^2 \theta}{\lambda w_0^2} \exp\left(-2\left(\frac{z \sin \theta}{w_0}\right)^2\right) \tag{1.3}$$

1.2.2/ APPLICATION DES FAISCEAUX DE BESSEL

C'est suite à leur réintroduction dans les années 2000 dans la communauté optique [45] que les faisceaux de Bessel connaissent un engouement scientifique spectaculaire. Ces faisceaux possèdent notamment une propriété non-diffractante, c'est-à-dire qu'ils conservent leur profil transverse tout au long de la propagation : ceci implique alors une propriété d'auto-reconstruction du profil spatial au cours de la propagation, lorsqu'un élément vient bloquer partiellement le faisceau [48].

La grande extension longitudinale associée à un profil transverse de faible diamètre propre aux faisceaux de Bessel [12] leur donne un atout significatif, comparativement aux faisceaux gaussiens dont le compromis entre diamètre et longueur de la tache focale limite les capacités. De ce fait, les faisceaux de Bessel ont trouvé de nombreuses applications en régime linéaire pour la manipulation de particules et les pinces optiques [45, 49–51], pour la microscopie [52–54] ou encore pour la tomographie à cohérence

optique [55].

Toutefois l'atout majeur des faisceaux de Bessel réside dans une stabilité lors de la propagation en régime non-linéaire à condition que l'angle conique soit suffisamment fort [10, 11]. Les applications des faisceaux de Bessel femtoseconde en régime non-linéaires sont multiples : on les retrouve notamment dans l'accélération de particules chargées [56–58], la génération de rayonnements terahertz [59, 60], le guidage de décharges électriques [61], la génération de hautes harmoniques [62]...

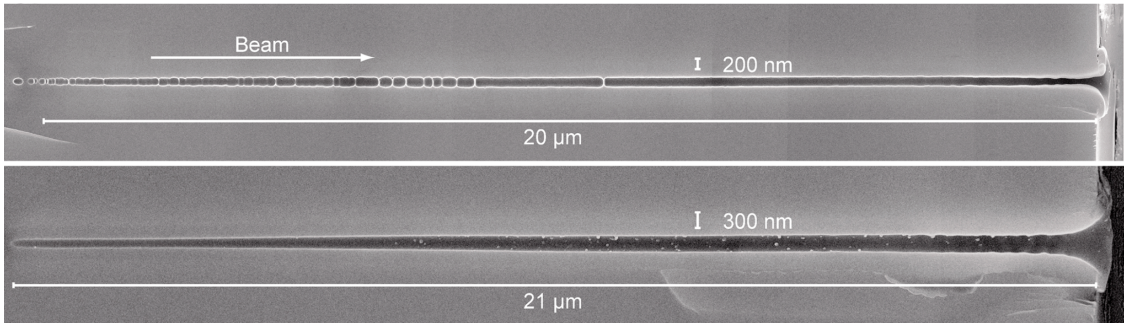

FIGURE 1.6 – Images en microscopie électronique de nanocanaux à haut facteur de forme, générés chacun par une impulsion unique mise en forme de faisceau de Bessel à haut angle (17° dans la silice fondue). Image tirée de [13].

Grâce à la stabilité aux distorsions non-linéaires, les faisceaux de Bessel en régime femtoseconde ont montré de grandes capacités pour l'usinage des matériaux transparents [63, 64]. Dans le cas particulier des verres, les faisceaux de Bessel sont utilisés pour l'induction de guides optiques par modification permanente de l'indice de réfraction [65, 66], l'ablation en surface [67, 68] ou encore l'ablation dans le volume avec la génération de nanocanaux à haut facteur de forme [13, 69, 70] (figure 1.6). L'usinage dans le volume permet également de fragiliser localement les milieux transparents et d'amorcer des points de fracture pour la découpe de verre à haute vitesse [17, 18] (figure 1.7) ; cette application est présentée plus en détails dans le second axe de cette thèse (chapitres 4 et 5).

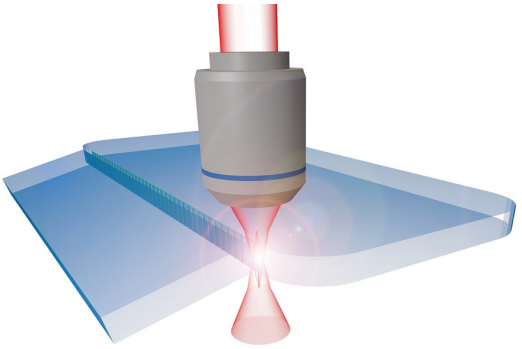

FIGURE 1.7 – Application des faisceaux de Bessel au clivage du verre : l'induction d'une succession de nanocanaux permet la fragilisation d'un plan sur l'ensemble de l'épaisseur du matériau, permettant de faire propager une fracture dans ce plan et d'obtenir ainsi une découpe haute vitesse.

Les faisceaux de Bessel sont adaptés aussi pour d'autres milieux transparents, comme les polymères [71] et le saphir où la formation de nano-cavités est également possible

[14]. Certaines applications aux métaux [72, 73] ou encore au graphène [74, 75] ont été démontrées, mais se limitent naturellement à de l'ablation de surface.

Dans notre cas, notre intérêt se porte sur le mécanisme d'ablation laser des milieux transparents (verre, saphir...) pour les faisceaux de Bessel en régime d'impulsions femtosecondes uniques, correspondant à l'application de génération de nanocanaux à haut facteur de forme. Nous souhaitons observer les effets non-linéaires à l'œuvre et la formation du plasma, laissant ensuite la place aux phénomènes de relaxation de l'énergie et à la formation d'un nanocanal.

1.2.3/ MODULATEUR DE PHASE SPATIALE

Il est possible de substituer à l'axicon une solution optique flexible et contrôlable par ordinateur. Le modulateur de phase spatiale (*spatial light modulator*, abrégé SLM) est un dispositif dont la fonction est de moduler le front d'onde de manière arbitraire. À la différence d'un miroir déformable, la modulation est assurée indépendamment point par point par une matrice de cristaux liquides, adressés optiquement ou électroniquement : l'orientation des cristaux liquides modifie localement l'indice de réfraction et par conséquent le retard optique que subit en transmission un champ optique. Le SLM représente alors un objet de phase pure agissant comme un hologramme programmable. Par conséquent, un SLM permet d'imposer à un faisceau incident un profil de phase arbitraire à deux dimensions, dynamique, et échantillonné par la dimension des pixels du dispositif.

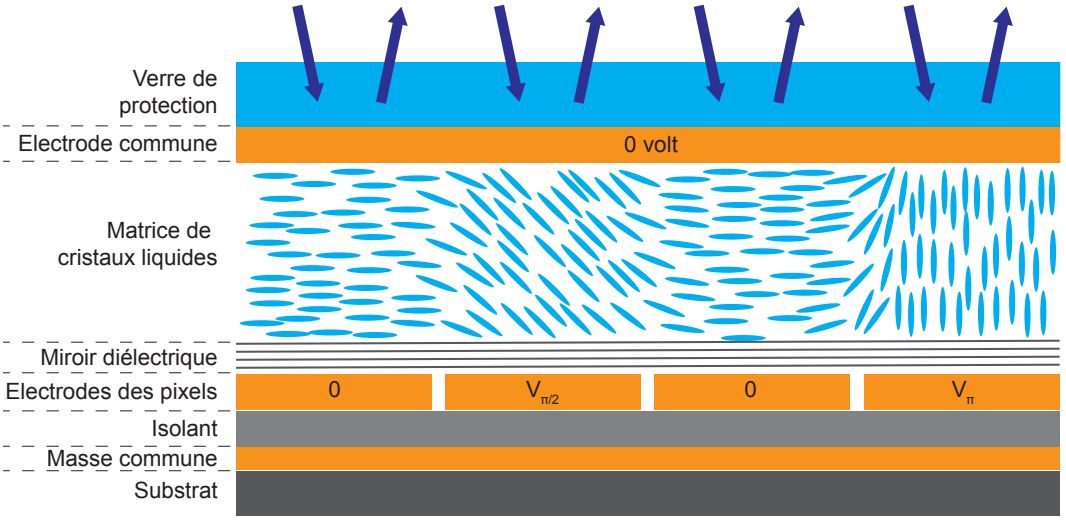

FIGURE 1.8 – Vue en coupe d'un SLM en réflexion. Chaque pixel possède une électrode permettant de faire tourner localement les cristaux liquides. Schéma tiré de [76].

L'échantillonnage par des pixels dont la dimension est de l'ordre de 10 à 20 longueurs d'onde limite les rampes de phase qu'il est possible de générer avec un SLM, sous peine de ne plus échantillonner proprement le profil de phase (respect du critère de Shannon [77]) : le SLM admet alors une fréquence de coupure et ne permet généralement pas d'accéder aux hauts angles. Le SLM autorise typiquement des angles d'environ 5-10 mrad.

Note : La génération de faisceaux de Bessel pour des applications d'usinage requiert des hauts angles coniques afin d'éviter les distorsions liées aux effets non-linéaires [10, 13]. Le SLM seul n'est alors pas adapté pour accéder aux hauts angles coniques nécessaires (autour de 20°). Un télescope de fort grandissement M doit être adjoint au SLM et remplir la fonction de réduction $1/M$ pour augmenter les angles d'un facteur M. Le couple SLM-télescope est couramment utilisé pour les applications d'usinage laser du fait de sa flexibilité et des forts angles accessibles.

Les SLMs trouvent de nombreuses applications dans une grande diversité de domaines. En tant que modulateurs de phase, on les retrouve naturellement pour de la correction optique [51, 78] ou de l'optique adaptative [79], permettant par exemple d'améliorer la résolution en microscopie [80]. L'affichage sous forme de matrices de pixels rend possible des connexions pixel à pixel employées pour les réseaux de neurones (*neural networks*) dont l'implémentation devient alors physique et tout optique [81, 82]. Même à bas flux, les SLMs sont exploitables et autorisent des applications en imagerie quantique, de type *ghost imaging* [83, 84].

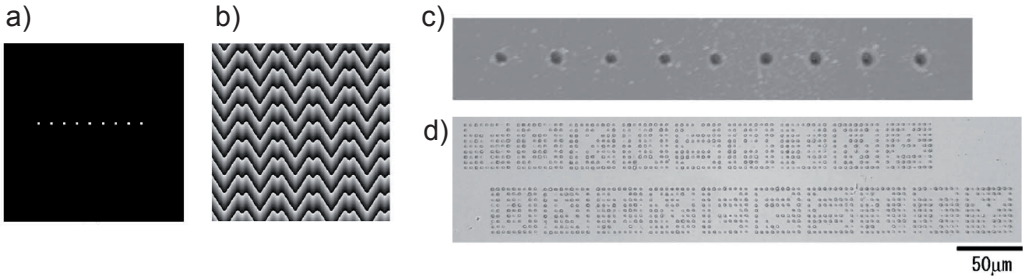

FIGURE 1.9 – Exemples de mise en forme spatiale complexe : a) profil d'intensité cible, b) masque correspondant affiché sur le SLM, c) ablation de surface réalisée en un tir laser unique à l'aide du masque (b), d) exemple d'application où chaque lettre est inscrite sur le milieu par un seul tir laser. Figure tirée de [85].

L'holographie numérique est également un domaine important pour les SLMs, pour de l'affichage 3D [86, 87] mais aussi pour la mise en forme spatiale de faisceaux. On trouve alors des applications pour les pinces optiques [88], la séparation de faisceaux en matrices pour l'usinage [85, 89] (figure 1.9), la génération de faisceaux non-diffractants comme les faisceaux de Bessel [44, 90, 91], les faisceaux accélérants ou autres caustiques [76, 92–95]. Enfin, pour conclure ce bref catalogue, citons les applications des SLMs à la mise en forme temporelle des impulsions grâce à une modulation dans le domaine spectral [96–98].

Séparation des ordres diffractés

L'affichage d'un masque de phase sur le SLM tient compte du fait que la phase est définie à 2π près : le SLM ne permet des profondeurs de modulation que sur $[0, 3\pi]$ le plus souvent, et une opération de *modulo* est alors nécessaire pour calculer le masque à afficher sur la matrice de cristaux liquides.

Lorsqu'on affiche une rampe de phase conique pour former un axicon virtuel, le SLM agit alors comme un axicon blasé en raison du repliement de phase sur 2π et se comporte comme un réseau en créant une collection d'ordres diffractés. L'ordre d'intérêt est ici

l'ordre 1 (la convention de signe est arbitraire), et afin de supprimer les autres ordres surnuméraires nous devons effectuer une opération de filtrage (ordres 2, 3, 4... mais également l'ordre 0 [1] et les ordres complémentaires : -1, -2, -3, -4...). Ceci est d'autant plus important que l'ordre 0 est intense en raison de l'efficacité de diffraction limitée du SLM : l'ordre 0 une fois focalisé est capable de participer à l'ablation d'une partie de l'échantillon, mais aussi d'endommager des optiques participant à la mise en forme du faisceau.

Appliquer un masque de phase conique en vue d'obtenir un faisceau de Bessel génère dans le plan de Fourier une collection d'anneaux, correspondants chacun à une paire [2] de faisceaux dont les angles coniques sont différents d'un anneau à l'autre (figure 1.10.a).

L'utilisation d'un télescope pour augmenter l'angle conique du faisceau de Bessel est pratique dans cette situation : dans le plan confocal commun aux deux lentilles, il existe un plan de Fourier dans lequel une opération de filtrage spatial est possible [99]. Un double filtrage par un iris et un masque circulaire permet d'isoler la contribution des ordres -1/1, sans pourtant pouvoir séparer ces contributions l'une de l'autre.

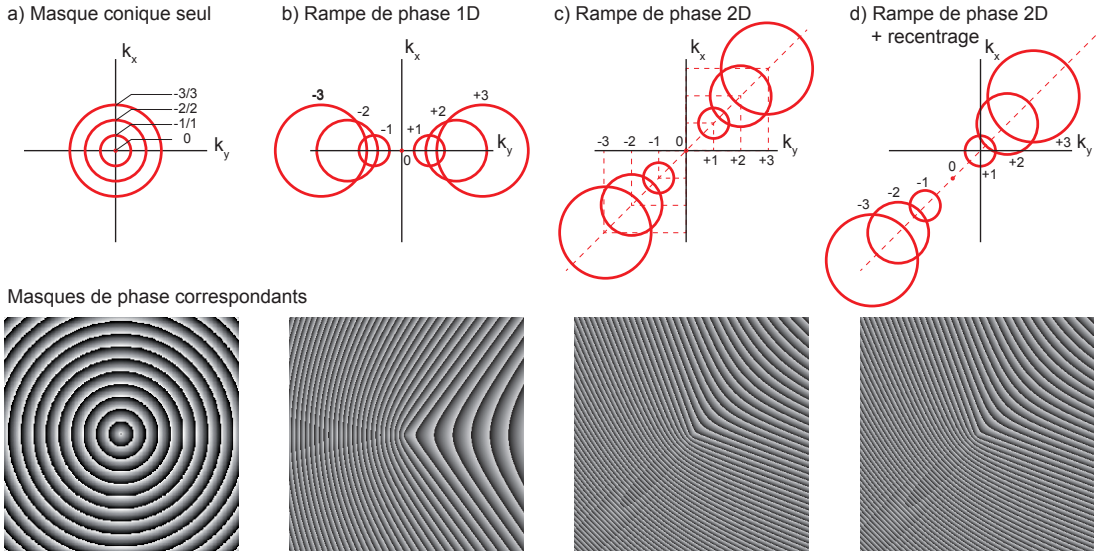

FIGURE 1.10 – Allure de l'intensité dans l'espace de Fourier lors de la génération de faisceaux de Bessel par un SLM. Les ordres de diffraction forment une collection d'anneaux, qu'on sépare par l'ajout au masque de phase conique (a) de rampes de phases linéaires (b-d). Les masques affichés sur le SLM sont donnés pour chaque cas.

L'ajout d'une rampe de phase linéaire ϕ_{ref} à la rampe de phase conique permet de lever cette ambiguïté (fig.1.10.b). La superposition de ces deux masques entraine la formation de hautes fréquences spatiales, qui limitent l'angle à l'origine de la séparation des angles dans l'espace de Fourier. Afin de satisfaire au critère de Shannon sur l'échantillonnage [77], nous choisissons d'appliquer une rampe de phase à 45° des axes propres du SLM, permettant ainsi d'obtenir une séparation spatiale $\sqrt{2}$ fois plus grande (fig. 1.10.c).

Une rotation physique du SLM permet enfin de recentrer les fréquences autour de la

1. De la même manière que pour un réseau de diffraction conventionnel, l'ordre 0 ne porte pas d'information modulée et doit donc être éliminé.

2. Les ordres +p/-p sont confondus, donnant un anneau unique dans l'espace de Fourier mais deux contributions dans l'espace direct. Ces deux contributions sont conjuguées l'une de l'autre.

fréquence spatiale nulle $(k_x, k_y) = 0$ et d'aligner l'ordre 1 sur les optiques (fig. 1.10.d et fig. 1.11). Bien qu'il subsiste une légère incursion de l'ordre +2 dans l'ordre +1, une simple pupille centrée sur l'axe optique nous autorise à éliminer tous les ordres non-souhaités [3].

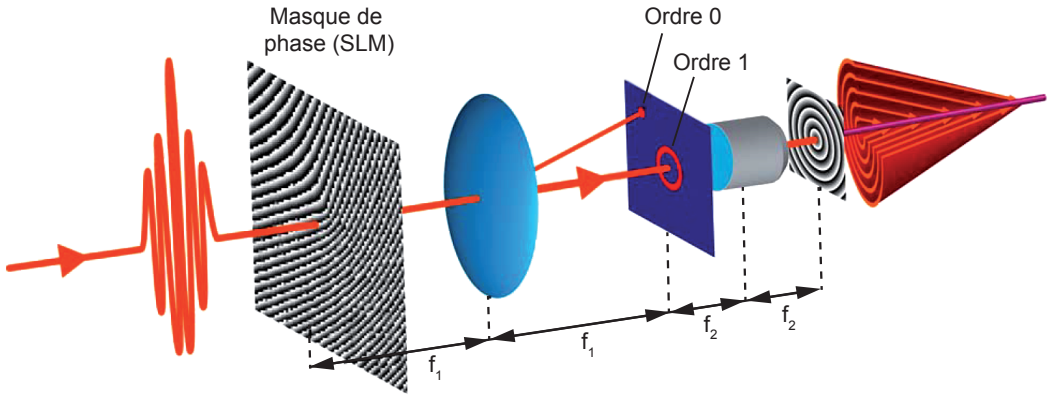

FIGURE 1.11 – Vue schématique du dispositif de mise en forme spatiale, utilisant un SLM et deux lentilles pour la génération d'un faisceau de Bessel à haut angle. L'ordre 1 est placé sur l'axe optique par rotation physique du SLM. Image tirée de [100].

Faisceaux de Bessel générés par SLM : chromatique

Il est à noter qu'avec un axicon, le faisceau de Bessel généré est chromatique puisque le profil prismatique (en géométrie cylindrique) induit de la dispersion angulaire : chaque fréquence crée donc un faisceau de Bessel d'angle conique différent. Tandis que la génération de faisceaux de Bessel par SLM se trouve être achromatique (dans le cas de la figure 1.10.a) et permet donc de générer des faisceaux de Bessel dont l'angle est identique pour chaque longueur d'onde [101]. L'ajout d'une rampe de phase ϕ_{ref} dédiée à la séparation des ordres de diffraction (fig. 1.10.b-d) rend toutefois le faisceau chromatique par dispersion angulaire le long de l'axe de la rampe de phase [100] (figure 1.12). Néanmoins, les impulsions femtoseconde considérées dans ce travail ne possèdent qu'une bande relativement étroite (typ. $\Delta\lambda$ = 10 nm autour de 800 nm) et sont peu sensibles à ces effets de dispersion angulaire, qu'on considérera comme négligeables.

1.2.4/ OPTIMISATION DU PROFIL LONGITUDINAL

Bien que les faisceaux de Bessel autorisent une stabilité du profil d'intensité aux effets non-linéaires à hauts angles, leur profil d'intensité axial ne permet pas un dépôt d'énergie homogène sur l'ensemble de la longueur du faisceau de Bessel. Nous cherchons alors le moyen de réaliser un faisceau de Bessel auto-similaire le long de son axe de propagation, aussi bien qualitativement que quantitativement, c'est-à-dire présentant un plateau d'intensité sur plusieurs dizaines de microns.

3. L'ordre 2 se propage sur un axe différent de l'ordre 1 : il suffit de laisser se propager le faisceau pour que le résidu d'ordre 2 s'éloigne de lui-même de l'axe optique.

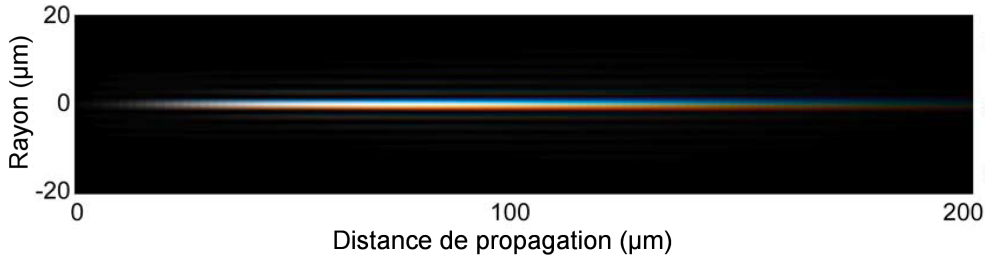

FIGURE 1.12 – Exemple de faisceau de Bessel rendu chromatique (dispersion angulaire) par l'ajout d'une rampe linéaire au masque de phase conique sur le SLM. Image tirée de [100].

Outre le profil constant au long de la propagation, ce type de profil possède un intérêt particulier concernant la propagation en régime non-linéaire. Notre équipe a pu montrer en utilisant un profil longitudinal contrôlé qu'une croissance parabolique réduit considérablement les instabilités et la génération de nouvelles fréquences spatiales [102, 103] (figure 1.13).

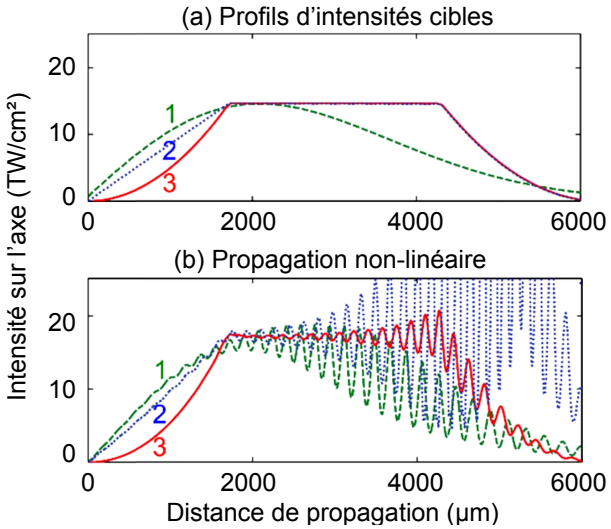

FIGURE 1.13 – Démonstration de l'effet du profil longitudinal d'intensité sur la propagation non-linéaire, avec trois profils cibles (a) : 1- faisceau de Bessel-Gauss ; 2- Bessel à plateau en z, croissance linéaire ; 3- Bessel à plateau en z, croissance parabolique. La propagation non-linéaire simulée (b) montre une grande instabilité avec les profils 1 et 2, tandis que le profil 3 réduit l'influence des effets non-linéaires. Issu de [102].

La réalisation d'un tel faisceau est possible par une modulation en amplitude du profil de faisceau au niveau de la mise en forme spatiale. Un SLM n'agit que sur la phase et ne permet pas seul de moduler conjointement l'amplitude du faisceau. Le contrôle d'amplitude est possible, mais le SLM devient alors un modulateur d'amplitude pure [104]. En utilisant une solution à deux SLMs [105] ou encore un couple SLM-DMD (matrice de micro-miroirs) [106], il est possible de réaliser une modulation conjointe en amplitude et phase. Il est toutefois possible de réaliser une modulation du profil d'amplitude effective à un seul SLM, en jouant sur l'efficacité de diffraction du SLM [104, 107].

L'utilisation de ce type de modulation conjointe autorise notamment la génération de fais-

ceaux de Bessel dont le profil $I(z)$ est constant au long de la propagation [108]. Un profil $I(z)$ constant est également possible par une modulation d'amplitude pure dans l'espace de Fourier à l'aide d'un SLM [109]. Bien que le profil de faisceau obtenu soit de grande qualité, cette technique possède un rendement très faible : la modulation s'effectue seulement sur un anneau fin, couvrant une très faible surface sur le SLM et l'essentiel de l'énergie du faisceau est perdue. Le travail dans l'espace direct et en jouant sur la profondeur de modulation autorise alors une bien meilleure efficacité, particulièrement recherchée pour la mise en forme de faisceaux dédiés à l'usinage laser.

Le masque de phase d'origine $F(x,y)$ est multiplié par une fonction de transmission effective $A(x,y)$, qui agit sur la profondeur de modulation sur le SLM. La géométrie conique assure une relation directe entre la coordonnée r sur le SLM et la position z le long de l'axe du faisceau de Bessel. Par conséquent le profil d'intensité longitudinal $I(z)$ du faisceau de Bessel est ajustable par le calcul de $A(r)$. Le masque de phase à appliquer pour atteindre une distribution d'intensité I_{cible} possédant la phase ϕ_{cible} s'écrit alors sous la forme [108] :

$$\Phi(x,y) = A(x,y)\mathrm{mod}\left[F(x,y) + \phi_{ref}, 2\pi\right] \tag{1.4}$$

dans laquelle les distributions d'amplitude A et de phase F sont :

$$\begin{cases} A(x,y) &= 1 + \frac{1}{\pi}\mathrm{sinc}^{-1}\left(\sqrt{\frac{I_{cible}}{I_{inc}}}\right) \\ F(x,y) &= \phi_{cible} - \pi A(x,y) \end{cases} \tag{1.5}$$

La fonction sinc^{-1} représente la fonction inverse de la fonction sinc, définie sur l'intervalle $[-\pi,0]$. Nous remarquons l'introduction de $I_{inc}(x,y)$ qui représente le profil d'intensité incidente au SLM : le calcul du masque à appliquer est réalisé en tenant compte du profil non-homogène du faisceau incident sur le SLM.

1.3/ UN PROCESSUS À LA MODÉLISATION INCOMPLÈTE

Le cœur de ce travail concerne l'investigation du processus spatio-temporel de création de plasma dans les conditions où un nanocanal peut se former.

La figure 1.14 présente des résultats expérimentaux obtenus dans notre groupe par Chen Xie, pour une propagation en régime linéaire d'un faisceau de Bessel à haut angle (25°) dans la silice fondue. Il s'agit d'une reconstruction du profil de fluence obtenu en scannant le faisceau à travers la face arrière de l'échantillon et en imageant pour chaque position la distribution de fluence. La figure (a) présente cette distribution en régime linéaire et (b) pour le cas d'une énergie dépassant le seuil d'ablation situé autour de 1 µJ (E_p = 1,6 µJ). Le profil de fluence n'est globalement pas affecté par la formation du plasma, ni par les effets d'autofocalisation : la structure du faisceau en régime non-linéaire est quasiment identique au cas linéaire et les lobes latéraux restent dans les deux cas bien parallèles au lobe central.

En comparant les résultats expérimentaux avec ceux apportés par la résolution de l'équation de Schrödinger non-linéaire couplant l'impulsion laser au plasma [7], il apparaît

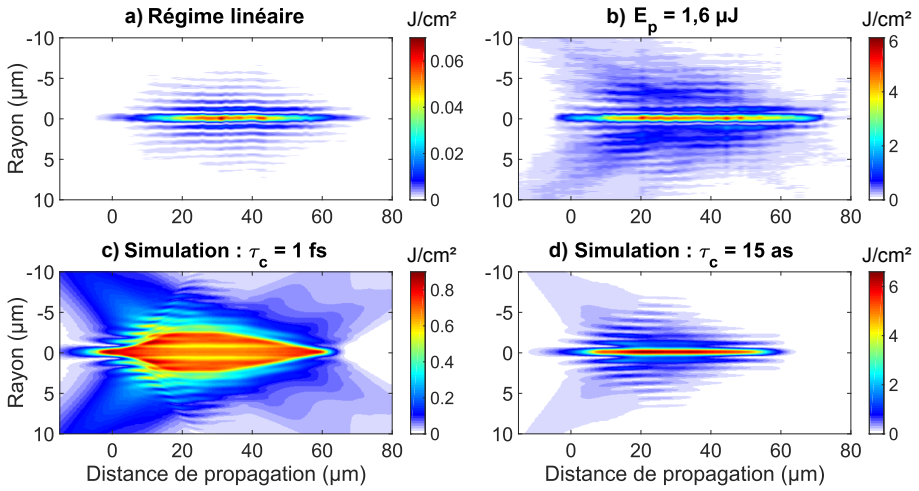

FIGURE 1.14 – Comparaison entre mesures expérimentales (a-b) et modèles numériques par résolution de l'équation de Schrödinger non-linéaire (c-d). En régime linéaire (a) comme non-linéaire (b) dans la silice fondue, le profil de fluence mesurée expérimentalement plan à plan suit un profil identique. Cependant le modèle intégrant la solution numérique ne permet de retrouver une situation comparable qu'en réduisant le temps de collision électronique moyen à 15 attosecondes (d), au lieu de 1 fs (c). Illustration tirée de [15].

une incompatibilité de description lorsque sont utilisés les paramètres standards associés à la silice fondue (c). Le profil de fluence modélisé avec les paramètres issus du modèle de Drude [7, 36] est bien plus large que ce qui est observé expérimentalement, lorsque le temps moyen de collision entre électrons (paramètre τ_c) est de 1 fs. Ces résultats sont issus de travaux de J. Zhang [110] et d'I. Ouadghiri-Idrissi [102].

Il est toutefois possible retrouver une compatibilité du modèle simulé avec les observations expérimentales en réduisant ce temps de collision à une valeur non-physique de 15 attosecondes. En termes physiques, la réduction du temps de collision à 15 as permet de rendre négligeable le terme lié à la défocalisation par le plasma [7, 111], et ainsi de conserver une interaction plus confinée que pour le cas τ_c = 1 fs. La réalité d'un temps de collision typique dans le domaine attoseconde est cependant non-physique vis à vis de la dynamique électronique [7] : un tel temps de collision nécessiterait des intensités quasi-relativistes. De plus le temps de collision est supposé être limité à environ 0,5 fs dans les modèles d'interaction laser-plasma [112]. La valeur réelle du temps de collision reste encore à mesurer.

La problématique sur le temps de collision renvoie à un problème d'équilibre entre l'absorption et la défocalisation liées au plasma, et suggère la présence d'un mécanisme d'absorption non-décrit par le modèle. Les mesures expérimentales montrent de plus que l'absorption dans le cas des faisceaux de Bessel d'ordre 0 peut excéder 60%, ce qu'aucun modèle d'interaction laser-plasma n'a pu prédire jusqu'ici.

De nouvelles approches sont alors nécessaires pour établir un modèle corrigé et restituer une dynamique plus fidèle à la réalité physique. Le principal enjeu motivant ces recherches concerne le contrôle de la distribution d'énergie déposée et la densité de plasma formé. Nous espérons notamment pouvoir fournir une explication à une observa-

tion précédemment réalisée dans notre équipe, montrant que pour une même gamme de fluence, les faisceaux de Bessel d'ordres supérieurs possèdent une absorption du faisceau limitée à 30% environ alors qu'elle dépasse 60% pour un faisceau de Bessel d'ordre 0. Le point critique se trouve alors dans une compréhension holistique de la physique et des mécanismes de couplage fort entre l'impulsion et le milieu d'interaction.

Un second problème réside dans la physique de formation de cavités dans les milieux, et particulièrement la formation de nanocanaux pour le cas des faisceaux de Bessel, à partir d'un profil spatial d'énergie déposée. Deux modèles de formations ont été proposés. Le premier défend l'idée d'une micro-explosion conduisant à la compression de la matière à proximité, ouvrant un vide cerné de matière dense [113–118]. Dans ce modèle, l'essentiel de la dynamique de formation du canal se produit en moins d'une nanoseconde, après que le milieu devenu liquide par transition de phase ultrarapide ait refroidi. Plusieurs résultats expérimentaux abondent dans le sens d'une micro-explosion, et particulièrement dans le saphir [14, 119].

D'un autre point de vue, la possibilité que la formation des nanocanaux soit un phénomène au contraire lent et s'écoulant sur plusieurs microsecondes a également été formulée [120] récemment. S'appuyant sur des techniques de microscopie à contraste de phase, cette étude propose que la dynamique d'ouverture du nanocanal commence à 1 ns et s'étende jusqu'à 15 µs.

1.4/ CARACTÉRISATION DE L'INTERACTION LASER-MATIÈRE

Nous cherchons à réaliser la mesure de la dynamique d'interaction de l'impulsion femtoseconde dans le volume des milieux transparents, et à caractériser le plasma formé qui est à l'origine du couplage fort entre laser et matière. Nous savons d'ores et déjà que plusieurs difficultés se présentent dont la principale est que l'interaction à étudier se produit au sein d'un solide et que l'accès à la distribution de densité de charge n'est pas direct. De plus, nous voulons résoudre la dynamique d'un plasma dont le diamètre est estimé à $\approx$ 200 nm et dont les échelles de temps caractéristiques se situent autour de 100 fs : ceci nous impose deux contraintes fortes pour nos observations concernant les résolutions spatiales et temporelles à atteindre.

Notre étude n'est pas la première de la sorte et plusieurs approches ont déjà été proposées dans cette situation pour déduire du comportement du milieu les propriétés de l'interaction laser-matière.

1.4.1/ APPROCHES PHÉNOMÉNOLOGIQUES

1.4.1.1/ CARACTÉRISATION POST MORTEM

Une grande part de l'étude de l'interaction laser-matière a longtemps été réalisée par caractérisation *post mortem* (après relaxation totale des phénomènes transitoires d'interaction laser-matière), pour laquelle on peut directement observer les conséquences finales du choix d'un jeu de paramètres liés au laser. Ces observations sont aisées à la surface des matériaux par des techniques de microscopie optique ou électroniques mais

restent plus délicates pour des interactions dans le volume. La microscopie électronique à balayage (MEB) reste inexploitable pour des mesures en profondeur et la microscopie optique voit sa résolution décroitre pour une imagerie dans le volume en raison des aberrations et de la diffraction [121, 122].

Il est cependant possible de faire cliver le matériau afin d'ouvrir par le milieu la zone ablatée afin d'observer l'ablation réalisée [13], mais cette technique reste hasardeuse et délicate à mettre en œuvre de manière fiable. On y préférera l'utilisation d'un faisceau d'ions focalisé (FIB) permettant de venir creuser à proximité de l'usinage à observer (détail de la méthode en annexe A). Il est alors possible d'observer des structures à des résolutions alors inaccessibles par d'autres techniques [14].

Une mesure de l'état du milieu (hors vide formé) est réalisable en utilisant par exemple une large collection de techniques. La spectroscopie micro-Raman [123, 124] ou une diffraction de rayons X permettent d'estimer un changement structurel du matériau [117, 125]. Une microscopie en polarisation ou une interférométrie permet de mesurer un changement local d'indice de réfraction [126–130]. Une étude de la réactivité des zones usinées à une attaque acide autorise également à quantifier la zone affectée par le dépôt d'énergie [131, 132].

1.4.1.2/ INSPECTION IN SITU

Les mesures ne se limitent pas à une observation *a posteriori* : durant l'interaction laser-matière, le plasma formé se comporte dans la plupart des modèles comme un milieu localement absorbant ou réfléchissant, suivant sa densité de charges libres. Il apparaît alors naturel de réaliser des mesures de transmission/réflexion de l'impulsion, en intégrant à la fois en espace et en temps la réponse du milieu [5, 133].

L'emploi d'un spectromètre comme appareil de mesure offre la possibilité de sonder la composition et la structure du milieu lors de l'interaction [134]. L'emploi d'une source à spectre large, voire supercontinuum, permet de mesurer le spectre de transmission d'un milieu durant l'interaction laser-matière et d'interroger ainsi une large plage de liaisons atomiques et/ou moléculaires [135].

Le couplage de l'impulsion femtoseconde intense avec le milieu est également source d'émission de rayonnement, dont la mesure permet de caractériser le phénomène à l'œuvre et la part d'énergie qui y est associée. Le plasma formé en régime de filamentation possède une haute température électronique et se comporte comme un corps noir dont l'émission spontanée renseigne sur sa température effective (loi de Wien) par spectroscopie [136]. Ce même signal nous renseigne en imagerie sur la distribution de l'énergie absorbée puis ré-émise [137, 138]. L'analyse du spectre d'émission du plasma se rapporte à la méthode LIBS (*Laser Induced Breakdown Spectroscopy*) couramment utilisée en chimie pour l'identification de matériaux.

Cependant toutes ces techniques se révèlent difficiles à mettre en œuvre ou ont une résolution spatiale trop limitée pour analyser les structures que nous souhaitons caractériser, dont l'échelle caractéristique est ≈ 200 nm.

1.4.1.3/ IMAGERIE RÉSOLUES EN TEMPS

Les techniques évoquées précédemment ont l'inconvénient d'intégrer dans le temps l'ensemble des phénomènes d'interaction laser-matière. Nous cherchons à distinguer ces contributions par une imagerie résolue dans le temps du processus d'ablation depuis la propagation de l'impulsion jusqu'à la formation d'un nanocanal.

La principale difficulté rencontrée est le temps de réponse des systèmes d'imagerie et le temps d'exposition sur lequel l'image est intégrée : un appareil photo ou une caméra, même ultrarapides, sont relativement lents devant les phénomènes à étudier. Une autre limite importante concerne l'échantillonnage de la dynamique, c'est-à-dire le temps s'étant écoulé entre deux images successives par rapport à la dynamique d'étude. Plusieurs approches principales existent pour surmonter ces difficultés.

Une première approche consiste à enregistrer la dynamique d'un phénomène unique, sans répétition de l'expérience. Cette approche a notamment été employée par Muybridge en 1882 pour décomposer la course d'un cheval au galop [139]. L'idée derrière ce principe est de mettre en place une imagerie distribuée, où chaque image correspond à un instant de la dynamique : Muybridge emploie une vingtaine d'appareils photographiques déclenchés successivement et résout la dynamique de course du cheval (figure 1.15).

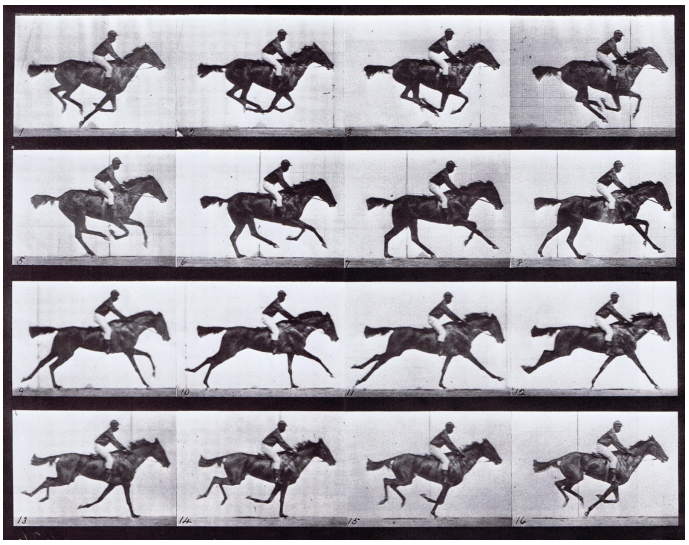

FIGURE 1.15 – 16 images issues de l'expérience de Muybridge, montrant la décomposition de galop d'un cheval lors d'un passage unique du cheval devant les appareils. Les appareils sont déclenchés par des fils tendus sur le chemin du cheval [139].

Le problème principal quant à adapter une telle imagerie pour les phénomènes ultrabrefs est le temps d'exposition des systèmes imageurs qui reste trop long (typiquement ns-µs) devant les temps caractéristiques du phénomènes. Il est possible de réaliser un temps d'exposition virtuel en utilisant un flash lumineux bref (1 µs par exemple), figeant la dynamique rapide d'un phénomène sur un système d'imagerie dont le temps d'exposition est plus long (quelques ms). En ajustant l'instant de déclenchement du flash par rapport à l'événement d'intérêt, il est possible de choisir la portion de dynamique à imager, comme

le montre de la figure 1.16 où Edgerton capture l'instant d'écrasement d'une goutte de lait sur une surface [140] ou l'instant auquel une balle de fusil a traversé une membrane de plexiglass.

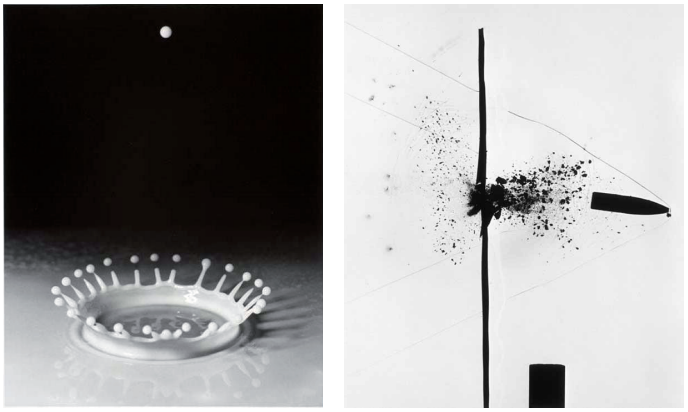

FIGURE 1.16 – Imagerie par stroboscopie par H. E. Edgerton d'une goutte de lait s'écrasant sur une plaque en 1935 (flash : 1 ms) [140] et d'une balle de fusil traversant une plaque de plexiglass en 1962 (flash : 12 µs)

Le cas de la balle de fusil est un exemple de la technique d'ombroscopie (shadowgraphie), dans laquelle le flash est placé à l'opposé du système d'imagerie : l'objet à étudier est alors imagé en transmission et laisse apparaître le détail de sa dynamique sous forme d'ombre. Cette méthode est particulièrement bien adaptée pour une image unique prise durant l'événement, mais rend délicat l'enregistrement de la dynamique de manière quasi-continue : même en utilisant une succession de flashes ultrabrefs et une caméra haute vitesse synchronisée avec ces flashes, le temps entre deux images reste grand devant le temps d'exposition obtenu.

Néanmoins lorsque le phénomène est répétable, il est possible d'imager un instant de la dynamique par stroboscopie, et de répéter l'opération en utilisant une nouvelle répétition du phénomène, dont l'image est prise à un instant différent : la dynamique temporelle est alors reconstruite en faisant varier le délai de déclenchement du flash d'une image à l'autre, dont l'incrément peut alors être bien inférieur à la vitesse de répétition d'une caméra ultrarapide (voir figure 1.17). De cette manière, il suffit de répéter l'événement autant de fois que l'on souhaite réaliser d'images pour décrire la dynamique.

Cette technique est tout à fait transposable au cas de la dynamique d'ablation laser. Nous disposons même d'un avantage majeur pour notre cas particulier d'imagerie pour un phénomène induit par laser ultrabref : l'impulsion laser à l'origine de la perturbation que l'on veut étudier peut être utilisée également comme un flash de stroboscopie. Les expériences dites *pompe-sonde* se basent sur ce principe : l'impulsion pompe est généralement intense et est responsable de la modification d'un milieu ; l'impulsion sonde est (le plus souvent) une réplique de l'impulsion pompe, de faible intensité, qui est imagée sur une caméra après avoir traversé le milieu perturbé. Le point critique de ces expériences se trouve dans le contrôle du délai pompe-sonde, qui définit l'instant à imager, et la durée d'impulsion sonde qui définit le temps d'exposition virtuel.

Cette technique permet de résoudre très finement la dynamique, tout en étant simple à mettre en œuvre. L'ensemble des techniques évoquées précédemment, à l'exception des

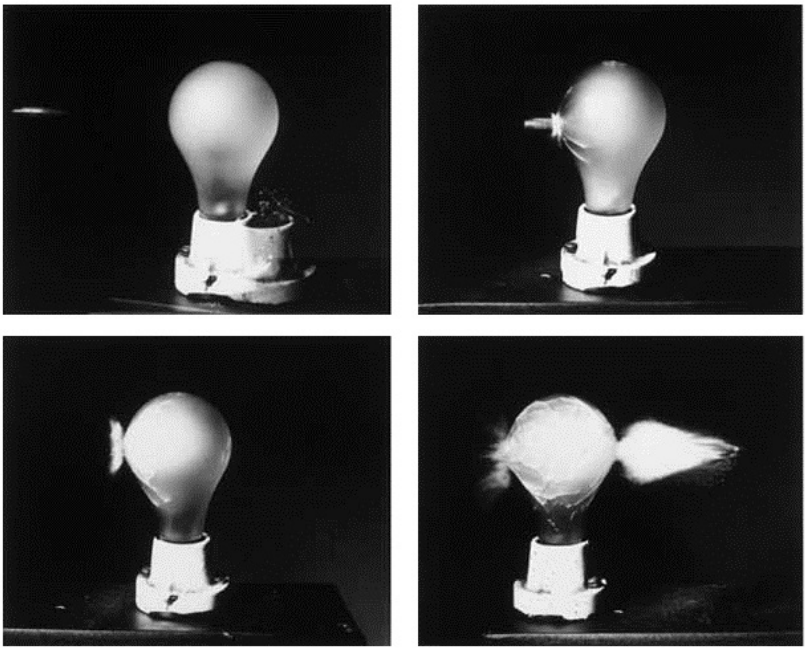

FIGURE 1.17 – Reconstruction de la dynamique par une stroboscopie en 4 images (exposition : 1 µs) : pour réaliser la séquence, 4 ampoules et 4 balles ont été nécessaires. Le délai entre le tir de fusil et le déclenchement du flash a été incrémenté de 750 µs entre chaque image. [141]

mesures *post mortem*, sont combinables avec les méthodes pompe-sonde et permettent de résoudre en temps la transmission [142–145], la réflexion [146–149], la réponse spectrale [135, 150], la phase [151], *etc*... dans un milieu durant le régime transitoire.

Le cas de l'interaction laser-matière est particulièrement avantageux, une nouvelle fois, du fait de la haute reproductibilité dans le processus d'ablation. Nous pouvons alors imager la dynamique d'interaction à ses différents instants en réalisant une image par tir laser, prise à différents délais pompe-sonde. La stabilité du laser est alors essentielle pour garantir la répétabilité nécessaire à cette mesure.

Note : Comme nous en discuterons dans le chapitre 2, la notion de temps absolu est délicate dans le cadre des expériences pompes-sondes puisque l'instant $t = 0$ n'existe pas à proprement parler : l'ensemble de l'expérience se base sur un temps de référence $\tau = 0$, correspondant à la superposition des impulsions pompe et sonde en un point donné de l'échantillon à observer (les vitesses de groupe dans le milieu des impulsions pompe et sonde ne sont pas nécessairement identiques).

1.4.2/ PLASMA, ABLATION ET IMAGERIE POMPE-SONDE

Plusieurs études ont déjà proposé des méthodes d'imagerie pompe-sonde pour l'observation et la mesure des mécanismes d'ablation et particulièrement de la dynamique des plasmas. Nous présentons ici quelques études emblématiques ayant apporté des

éléments de réponse significatifs sur la dynamique d'ablation.

1.4.2.1/ CONFIGURATION D'IMAGERIE

Tour d'abord, nous pouvons distinguer deux approches principales pour l'imagerie pompe-sonde, dépendant de la configuration optique choisie pour l'imagerie.

Une solution techniquement simple consiste à placer l'axe optique du faisceau sonde de manière croisée par rapport à celui de la pompe (exemple : figure 1.18). Les deux faisceaux sont donc aisément séparables et une imagerie en transmission est particulièrement bien adaptée [31, 127, 152–154].

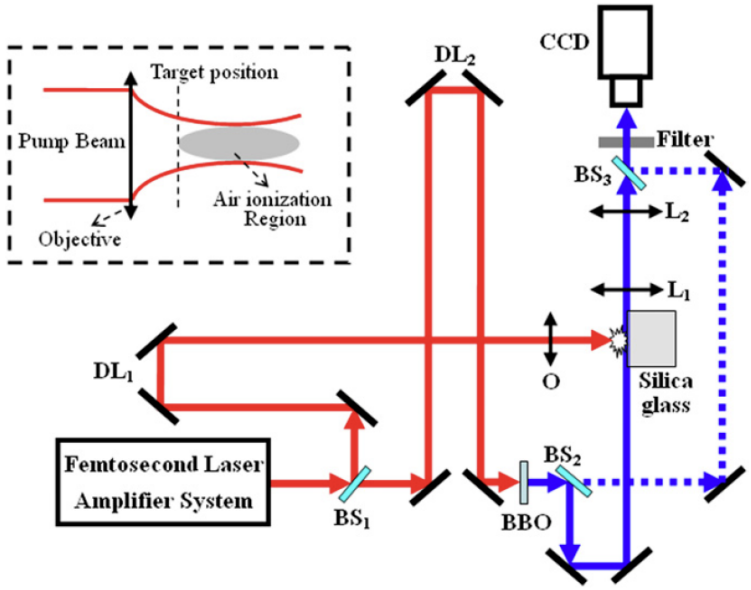

FIGURE 1.18 – Montage expérimental d'imagerie pompe-sonde en observation par le côté, les axes optiques pompe et sonde étant perpendiculaires. Schéma tiré de [127].

Le cas extrême est un croisement à la perpendiculaire [31, 120, 127, 152–154], pour lequel le phénomène est observé par la tranche. Les faisceaux pompe ayant le plus souvent une géométrie cylindrique (faisceau gaussien ou faisceau de Bessel par exemple), une observation par le côté permet d'extrapoler de manière assez directe une vue à 2D des modifications induites à un profil 3D, en supposant que cette géométrie est conservée pendant l'interaction.

L'inconvénient majeur de cette technique se situe au niveau de l'échantillon qui doit alors être mince selon l'axe de propagation de la sonde pour optimiser la qualité de la mesure, et surtout dans le faible nombre de tirs qu'il est possible d'inscrire dans l'échantillon (accès à une ligne seulement). De plus, elle complique l'estimation du diamètre du plasma dans le plan transverse : la projection sur un plan d'une interaction en géométrie cylindrique nécessite une transformée d'Abel inverse pour reconstruire le profil transverse et/ou le profil à trois dimensions [155].

Il est alors possible de réaliser une mesure colinéaire, où pompe et sonde partagent le même axe, et le plus souvent les même optiques de focalisation et de collection [156]

(figure 1.19). Dans ce cas, l'observation se fait de manière perpendiculaire à l'axe de propagation de l'impulsion pompe et seule une coupe transverse est disponible à l'imagerie. Cette disposition est très adaptée pour la recherche d'inhomogénéités et de brisures de symétrie transverses dans les perturbations induites.

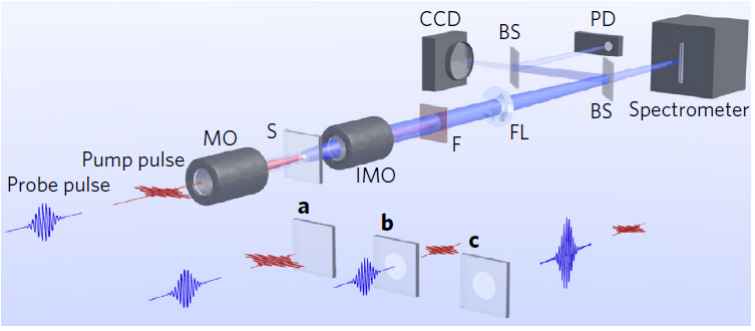

FIGURE 1.19 – Montage expérimental d'imagerie pompe-sonde colinéaire, partageant les mêmes optiques de focalisation de collection. Schéma tiré de [156].

1.4.2.2/ MÉTHODES DE MESURE OPTIQUE

Le type de configuration optique conditionne le type de profil mesuré par l'instrument imageur, cependant la méthode d'imagerie utilisée conduit à différentes informations disponibles, et par conséquent à des mesures différentes.

La méthode la plus simple à mettre en place est une imagerie par transmission, où l'observation se fait par un simple microscope équipé d'une caméra [127, 154, 156]. Dans cette configuration, l'ensemble des perturbations induites est vu comme une variation d'intensité du signal sonde sur la caméra : on retrouve une configuration de ombroscopie (ou shadowgraphie).

Grâce à cette méthode, et en observant par le côté, Hu *et al.* ont par exemple mis en évidence l'induction par faisceau gaussien à haut flux (2 - 40 J/cm^2) d'un filament dans le verre et d'une relaxation mécanique de l'énergie sous forme d'ondes de choc multiples qui témoigne de hautes pressions accumulées à proximité du dommage induit (figure 1.20).

Sa simplicité rend cette technique très populaire, et notamment pour les mesures d'absorption transitoire comme celle induite par le plasma [157]. Cependant la mesure ne distingue pas les contributions d'absorption de celles de phase : par exemple sur la figure 1.20, les ondes de choc sont vues de la même manière que le plasma, alors qu'une onde de compression n'absorbe pas l'onde sonde.

Nous nous tournons alors vers les méthodes autorisant la séparation des contributions d'amplitude et de phase correspondant aux perturbations induites dans le milieu. En ajoutant un bras de référence à l'expérience d'ombroscopie, il est possible de réaliser un interféromètre pompe-sonde conduisant à la formation d'un hologramme sur la caméra de collection, après recombinaison des deux faisceaux sonde [127, 153, 154]. Sur la figure 1.18, ce bras de référence existe et figure en pointillés.

En utilisant des prismes de Wollaston pour former l'interférogramme sur la caméra, Ber-

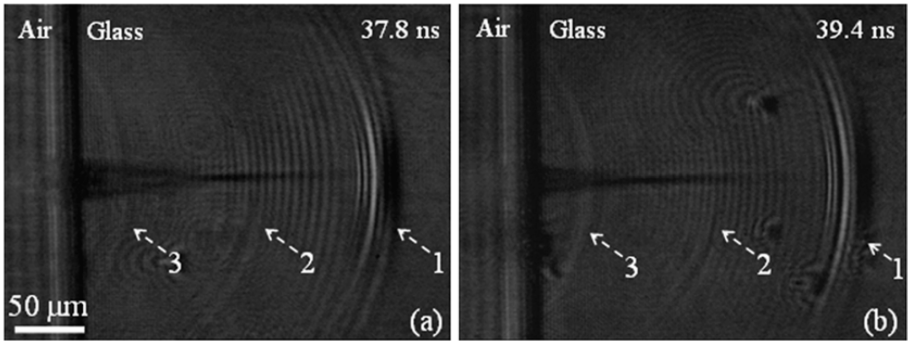

FIGURE 1.20 – Ombrogrammes présentant 3 ondes de choc (1,2,3) se propageant depuis un filament (ligne sombre) induit par un faisceau gaussien à 40 J/cm^2 (50 fs), vu depuis le côté. En haut à droite figure le délai correspondant aux deux images. Figure tirée de [127].

gner *et al.* parviennent à compléter l'information d'absorption liée au plasma par une cartographie de la variation d'indice de réfraction, résolue dans le temps et vue par le côté, pour un faisceau pompe gaussien (figure 1.21) [154].

La connaissance de l'indice de réfraction est d'un intérêt prononcé et permet de découpler les effets physiques en jeu à un instant donné (par exemple, $\Delta n > 0$ pour l'effet Kerr et $\Delta n < 0$ pour le plasma).

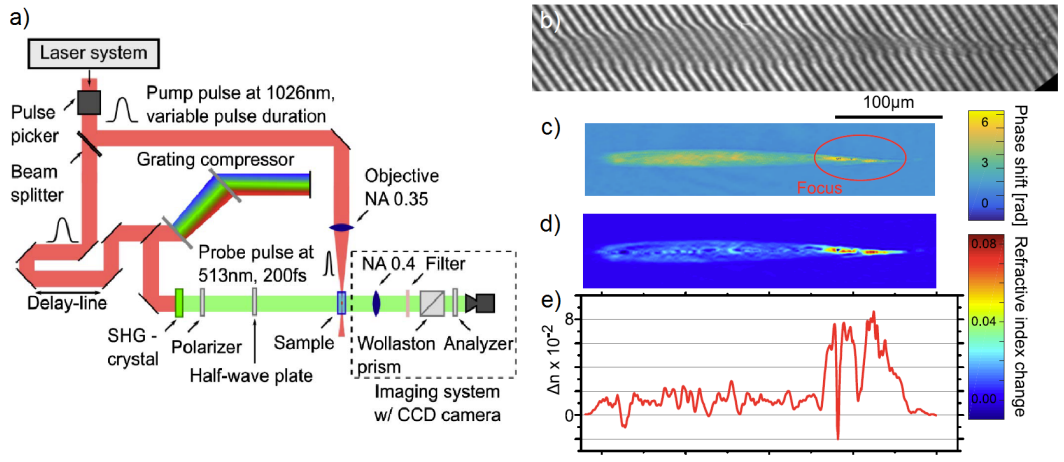

FIGURE 1.21 – (a) Montage interférométrique permettant la formation d'un hologramme (b) en imagerie pompe-sonde, autorisant la reconstruction de la phase (c) puis de l'indice de réfraction à une (e) et deux dimensions (d) pour différents délais pompe-sonde. Figure tirée de [154].

Une approche similaire a été proposée par Hayasaki *et al.* [152, 153]. Cette fois leur interféromètre utilise deux faisceaux sonde, chacun conduisant à une mesure interférométrique. L'excitation est une nouvelle fois une impulsion pompe gaussienne, et l'observation se fait par le côté. Grâce à l'holographie, il est possible de découpler l'information de phase et d'absorption dans l'échantillon [152, 153] : Hayasaki *et al.* exploitent alors le ratio d'absorption à 800 et 400 nm, sans subir d'influence de l'information de phase. Ils mesurent alors le déclin du plasma et en extraient le temps caractéristique de 150 fs dans le verre.

L'interférométrie autoréférencée [152–154] ne fournit toutefois pas la phase absolue mais ne donne accès qu'au gradient de phase selon l'axe des franges d'interférence. Ceci pose alors quelques difficultés quant à la reconstruction de la phase, et particulièrement lorsque l'intensité collectée est nulle, conduisant à une ambiguïté de phase.

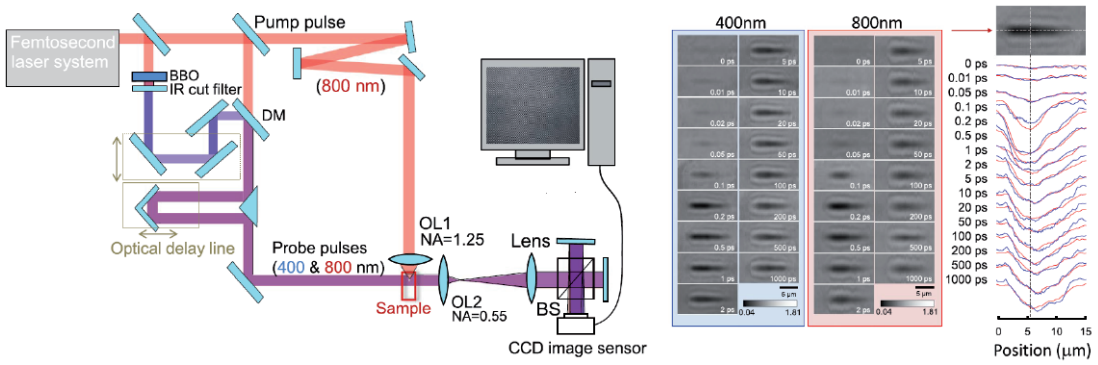

FIGURE 1.22 – De gauche à droite : montage expérimental de Hayasaki *et al.* et profils d'absorption reconstituée, à 800 et 400 nm. Figure tirée de [153].

Il est aussi possible de réaliser une interférométrie spectrale. Dans ce cas, une des dimensions de la caméra est dédiée à l'information spectrale et la mesure s'effectue alors spatialement selon une ligne [30, 31]. Dans cette solution, deux impulsions sonde partagent le même chemin optique mais sont temporellement espacées : la modification induite par la pompe est alors placée temporellement *entre* les deux impulsions sonde. La première impulsion sonde n'est pas perturbée par le milieu et sert alors d'onde de référence.

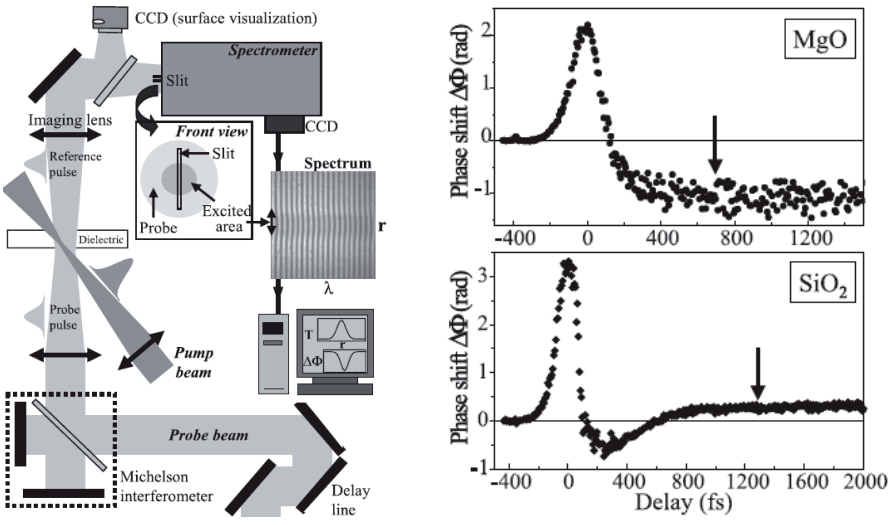

FIGURE 1.23 – De gauche à droite : montage expérimental de Mao *et al.*, et profils d'absorption transitoire dans la silice fondue (SiO_2) et la magnésie (MgO). Figure tirée de [31].

Grâce à cette méthode, Audebert *et al.* et Mao *et al.* mesurent les variations de phase induites par une impulsion gaussienne dans la silice fondue (et dans la magnésie pour

Mao *et al.*) et étudient la présence de Self Trapped Excitons [30, 31]. Dans la silice fondue la phase augmente à partir de 200 fs et devient positive au delà de 600 fs, démontrant ainsi la présence de STE.

Cette technique est toutefois limitée à une courte plage de délais pompe-sonde (maximum : 2 ps pour Mao *et al.*), en raison de l'échantillonnage sur le spectromètre : une large étendue temporelle (un long délai) correspond à des franges serrées dans le domaine spectral.

Il est également possible d'aller plus loin que l'emploi de 2 longueurs d'ondes : dans une exploitation plus conventionnelle de la spectroscopie, Winkler *et al.* montrent par spectroscopie pompe-sonde un phénomène d'amplification de l'impulsion sonde grâce à la perturbation induite dans le saphir par l'impulsion pompe [156] (montage expérimental en figure 1.19).

Tous ces exemples traitent d'une excitation par des faisceaux gaussiens, mais sont tout à fait transposables au cas des faisceaux de Bessel. L'étude de la dynamique d'ablation par faisceau de Bessel reste le plus souvent cantonnée à la shadowgraphie [71, 158] mais trouve également des mesures incluant la partie réelle de l'indice de réfraction.

Bhuyan *et al.* exploitent la microscopie à contraste de phase pour observer les mécanismes de formation de nanocanaux dans la silice fondue, sous une excitation par faisceau de Bessel [120]. L'observation du profil de phase leur permet de remonter à l'indice local pour des délais allant jusqu'à 15 µs. L'évolution constante existant sur cette période les amène à conclure à un processus de micro-explosion "lente" (figure 1.24), c'est-à-dire se produisant au delà du régime nanoseconde.

Les dimensions du plasma formé se trouvant sous la longueur d'onde utilisée pour sonder le milieu, la microscopie à contraste de phase employée se retrouve alors hors de son domaine de validité et les indices mesurés peuvent alors être biaisés (notamment des erreurs sur le signe de l'indice).

La plupart des études se concentre sur la formation des nanocavités et la propagation des ondes de choc liées à la relaxation mécanique de l'énergie. Les délais associés sont relativement longs devant les temps caractéristiques de formation du plasma. Dans le cas des faisceaux de Bessel, il existe un manque dans la description du plasma pour des délais inférieurs à 1 ps, et pour des mesures spatialement résolues à l'échelle du plasma. Le faible diamètre des nanocanaux formés par les faisceaux de Bessel à hauts angles nous indique que l'interaction laser-matière est confinée dans une région dont le diamètre n'excède pas quelques microns. Aux problématiques temporelles s'ajoutent alors des contraintes en terme de résolution spatiale de l'expérience à concevoir afin de pouvoir résoudre la dynamique à l'échelle du nanocanal. Les méthodes présentées dans cette partie se limitent spatialement à une résolution de l'ordre de 1 µm (900 nm pour Hayasaki *et al.* [153]).

Un inconvénient de l'utilisation des faisceaux de Bessel est la grande longueur d'interaction : dans le cas d'une interaction très localisée et dont le diamètre est proche de la longueur d'onde sonde, la diffraction sur l'ensemble de la longueur du faisceau de Bessel n'est absolument pas négligeable et il devient difficile de distinguer l'effet à observer de

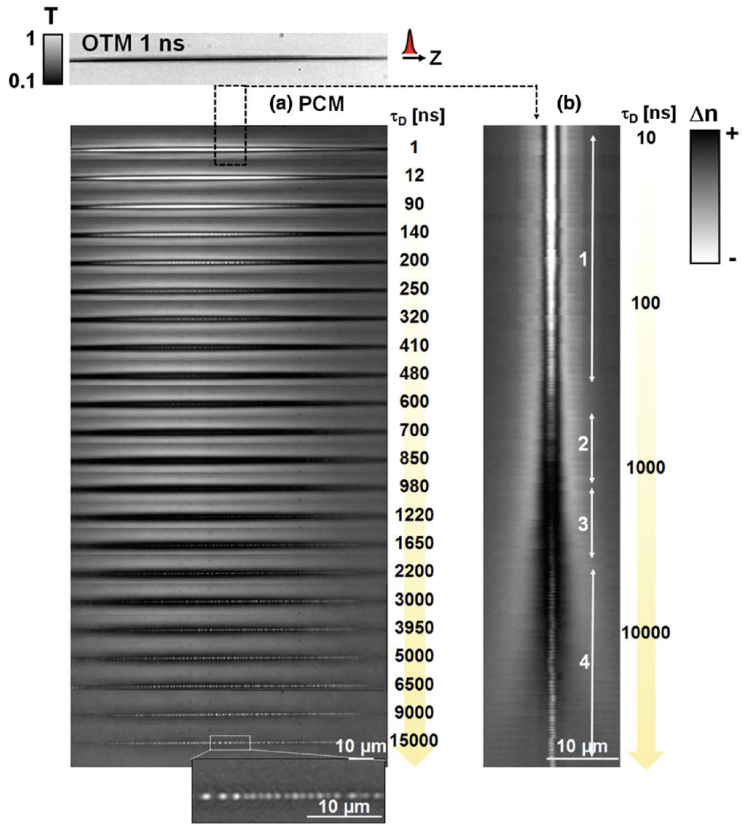

FIGURE 1.24 – Évolution de l'indice de réfraction local, mesuré par microscopie à contraste de phase lors d'une ablation par faisceau de Bessel. Figure tirée de [120].

la diffraction qu'il induit. L'imagerie pompe-sonde sur l'axe est donc couramment évitée dans la littérature et une imagerie par le côté est presque systématiquement préférée, laissant donc une incertitude quant au profil transverse du plasma. Ceci nous motive à proposer une technique d'imagerie sur l'axe, résolue en temps et en espace de manière à pouvoir résoudre au mieux la dynamique du plasma induit par un faisceau de Bessel à haut angle.

1.5/ APPROCHE PROPOSÉE : EXPÉRIENCE POMPE-SONDE INTERFÉROMÉTRIQUE

Nous souhaitons dans ce travail pouvoir statuer sur la dynamique du plasma et ses grandeurs caractéristiques, lors de l'inscription de nanocanaux par faisceaux de Bessel femtoseconde. À terme, le but de l'expérience sera de déterminer la densité atteinte au cœur du plasma, afin de répondre à la question qui reste en suspens depuis les débuts de l'usinage laser femtoseconde par faisceaux de Bessel : la densité critique est-elle atteinte lors du processus d'ablation conduisant à la formation de nanocanaux à haut rapport de forme ?

Si nous arrivions à un tel constat, ce résultat aurait de fortes implications sur le modèle du mécanisme d'absorption et de l'interaction laser-plasma : nous nous attendons

alors à observer de l'absorption résonante sur le plasma ou encore des phénomènes d'absorption non-collisionnelle. La présence d'un plasma sur-critique serait également un point d'appui fort pour la théorie de formation des nanocanaux par micro-explosions [114, 115]. En outre, ceci permettrait d'ajouter des éléments de compréhension sur la différence d'absorption existant entre les faisceaux de Bessel d'ordre 0 et d'ordre supérieurs [44].

Le principe de notre expérience utilise une combinaison de l'holographie pompe-sonde avec les méthodes de reconstruction de phase, dans le but d'établir une cartographie à trois dimensions de la modification d'indice de réfraction induite par les différentes contributions du processus (plasma, ondes mécaniques, formation du nanocanal...).

La partie pompe de l'expérience permet une mise en forme d'une impulsion spatialement gaussienne sous un profil de faisceau de Bessel à haut angle dans l'échantillon. L'impulsion pompe possède une énergie et une durée à mi-hauteur autorisant la formation de nanocanaux en régime de tirs femtoseconde uniques.

Pour la partie sonde, nous travaillons avec un système d'imagerie sur l'axe, dont le grandissement est fort afin d'échantillonner au mieux les dimensions spatiales. Le choix d'une imagerie sur l'axe est fait avec la volonté de privilégier la résolution transverse, puisque le profil longitudinal de l'intensité pompe est censé être constant le long de l'axe de propagation. L'imagerie se fait de manière holographique grâce à un bras de référence, pour enregistrer à la fois la partie réelle et la partie imaginaire de l'indice de réfraction.

Nous procédons après l'enregistrement des hologrammes pour différentes situations à une démodulation numérique conduisant à la récupération de l'amplitude complexe du champ sonde traversant l'échantillon. En réalisant des mesures dans différents plans le long de l'axe optique, nous parvenons à nous abstraire de la diffraction par un calcul de propagation numérique. De ces opérations nous déduisons alors l'indice de réfraction transitoire à un instant donné, sur le temps d'intégration lié à la durée de l'impulsion sonde.

Les techniques de mesures optiques décrites dans la section précédente sont toutes réalisées avec une résolution spatiale relativement faible (ouverture numérique $< 0{,}55$), ne permettant pas de résoudre le plasma ni une nanocavité formée *a posteriori*. Nous travaillons alors en imagerie à haute ouverture numérique (NA = 0,9) et à courte longueur d'onde (λ_s = 400 nm) afin d'obtenir une résolution spatiale transverse suffisante pour observer un nanocanal et le nanoplasma associé (220 nm au critère de Rayleigh).

Notre expérience possède une large plage de délais accessibles (6,6 ns), mais également un échantillonnage temporel minimal [4] situé à 6 ordres de grandeurs en dessous (3,3 fs). Ce grand écart nous permet de travailler avec une approche multi-échelle à résolution adaptative, telle que chaque plage de délai soit couverte en 100 pas environ. Nous considérons deux gammes de délais pour notre étude : [0, 1] ps (échantillonnage à 3,3 fs), et [0, 6] ns (échantillonnage à 20 ps), permettant respectivement de résoudre les mécanismes de couplage électronique et de relaxation d'énergie mécanique dans le milieu. Pour le cas sub-picoseconde, des images à délai négatif seront également enregistrées, de manière à observer les phénomènes se produisant sur le front montant de

4. Il faut ici distinguer la résolution temporelle, liée à la durée d'impulsion sonde (et correspondant à un temps d'intégration effectif pour chaque image pompe-sonde), de l'échantillonnage en délai lié à la plus petite variation de délai accessible.

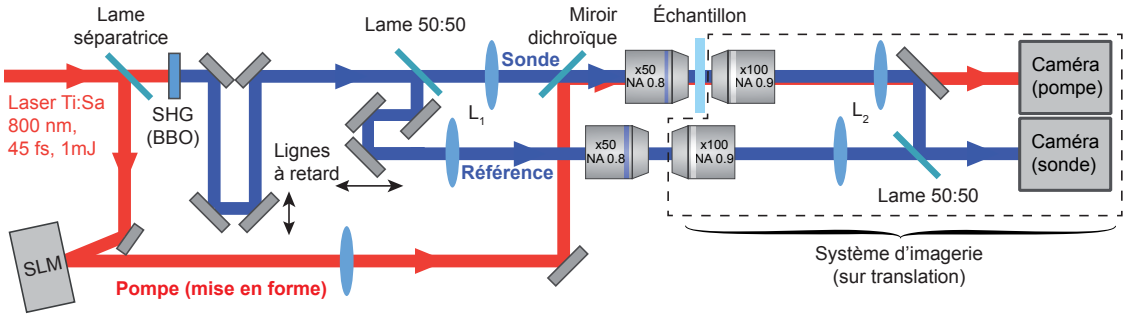

FIGURE 1.25 – Montage expérimental utilisé pour ce premier axe de travail (chapitres 2 et 3). La pompe est mise en forme par un SLM allié à un télescope de fort grandissement, la sonde est obtenue par une réplique de l'impulsion pompe, doublée en fréquence (SHG). Des lignes à retard contrôlent le délai pompe-sonde et le délai entre sondes interférométriques.

l'impulsion pompe et à caractériser la mesure hors perturbation liée à la pompe.

Nous étudions particulièrement trois milieux, afin de comparer la réponse non-linéaire et la formation du plasma pour différents types de structures. Nous utilisons la silice fondue comme matériau amorphe de référence, puisqu'elle est très bien connue et tabulée. Le borosilicate sert de milieu témoin pour évoquer la question des verres utilisés dans les applications industrielles (microélectronique, écrans...), essentiellement composés de silice fondue mais contenant aussi souvent des composés fluorés, borés, plombés, etc... en vue d'améliorer leurs propriétés optiques ou mécaniques. Enfin le saphir nous permet d'étudier la réponse d'un milieu cristallin à large bande interdite (10 eV) sans génération de Self Trapped Excitons (STE), et à le comparer avec les verres amorphes dont la bande interdite est de largeur similaire (9 eV).

Le chapitre 2 qui suit présente une technique mise en place afin de réaliser la synchronisation pompe-sonde et l'optimisation spatio-temporelle de l'impulsion sonde au sein même de l'échantillon. Le chapitre 3 présente quant à lui les méthodes utilisées pour extraire de nos interférogrammes l'information sur l'indice de réfraction, lié directement à la densité du plasma. Des premiers résultats très prometteurs y sont présentés et mis en lien avec deux expériences complémentaires, nous renseignant sur les processus d'interaction non-linéaire à proximité du plasma.

2

EXPÉRIENCE POMPE-SONDE : DIAGNOSTIC IN SITU

2.1/ INTRODUCTION

Les expériences pompe-sonde se basent toutes sur une connaissance *a priori* du délai séparant l'arrivée des impulsions pompe et sonde dans le milieu à étudier. Retrouver de manière absolue ce délai n'est pas une chose aisée, et une revue de la littérature à ce propos [159] nous montre que les méthodes existantes jusqu'alors exigent des caractéristiques précises aussi bien sur l'échantillon que sur les impulsions elles-mêmes.

Ces contraintes mènent à des compromis, comme la modification de la configuration optique et/ou le changement du milieu d'interaction entre la mesure du délai et les mesures pompe-sonde, qui obligent à faire la supposition forte que le délai reste invariant entre ces deux mesures.

Dans ce chapitre, nous nous consacrons à l'utilisation d'une méthode permettant de s'affranchir de ces contraintes. Nous traitons des questions liées à l'optimisation des mesures de délai dans l'expérience pompe-sonde, grâce à une technique *in situ* ne nécessitant pratiquement aucune modification de l'expérience ni de son milieu d'étude. De plus, nous constatons que cette méthode présente une haute efficacité permettant de travailler sur des échantillons minces et à des intensités optiques relativement faibles.

Nous retrouvons le délai absolu entre les deux impulsions pompe et sonde au sein même de l'échantillon, directement dans les conditions de mesure, et nous montrons que notre méthode permet également de retrouver le délai absolu pour différentes positions de focalisation dans l'échantillon.

La relation entre le signal mesuré et les profils temporels des impulsions pompe et sonde nous permet de caractériser l'impulsion sonde quantitativement au niveau de l'échantillon et d'optimiser sa durée afin de recouvrer la résolution temporelle idéale. Enfin, nous remarquons que la technique est sensible également aux variations du profil spatiotemporel de l'impulsion sonde, permettant de corriger les défauts d'alignement d'un compresseur à prismes.

2.1.1/ CONTRAINTES À LA RÉALISATION D'UNE EXPÉRIENCE POMPE-SONDE

Si la technique d'imagerie pompe-sonde a démontré être un outil extrêmement performant, c'est néanmoins sur la base de trois hypothèses fortes que reposent son principe et ses performances :

1. Le phénomène à étudier est reproductible.
2. Le délai relatif entre pompe et sonde est contrôlable et connu.
3. L'impulsion sonde est de faible intensité et suffisamment brève pour résoudre la dynamique du phénomène à observer.

Reproductibilité : la reproductibilité est la colonne vertébrale de la technique pompe-sonde. Afin de réaliser la restitution de la dynamique par stroboscopie, il est nécessaire que le phénomène induit par l'impulsion pompe puisse être reproduit identiquement pour chaque image de la série de mesure, correspondant chacune aux différents instants de l'évolution temporelle.

Dans notre cas particulier, cette hypothèse est vérifiée : l'ablation par laser femtoseconde est justement extrêmement reproductible d'un tir à l'autre. Par exemple, une observation au microscope électronique à balayage d'une matrice de nanocanaux, réalisés dans les mêmes conditions, en témoigne comme le montre la figure 2.1 : le profil d'ablation est similaire d'un tir à l'autre.

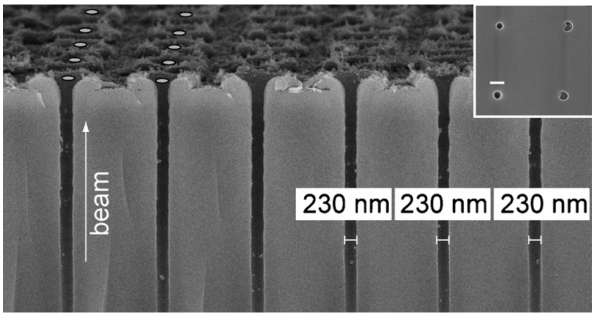

FIGURE 2.1 – Image au microscope électronique, montrant une section d'échantillon dans laquelle on a inscrit une matrice de nanocanaux par faisceaux de Bessel. On notera la grande similarité d'un canal à l'autre. Image tirée de [13].

Délai pompe-sonde : la bonne gestion du délai relatif pompe-sonde est garante de la fidélité et de la précision temporelle de la mesure. Dans une expérience optique, le contrôle du délai relatif pompe-sonde est assez aisé, même pour des délais de l'ordre de la dizaine de femtosecondes : une simple ligne à retard, constituée de deux paires de miroirs et d'une platine de translation micrométrique, permet de remplir cette fonction (figure 2.2).

En revanche la détermination d'un délai de manière absolue est plus délicate, car reposant sur la connaissance de la variation $\Delta\tau$ de retard lorsqu'on déplace les miroirs de la ligne à retard, et l'accessibilité au délai nul $\tau = 0$ tel que pompe et sonde soient coïncidentes temporellement.

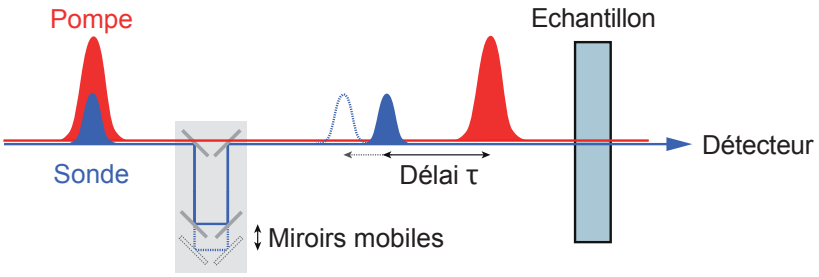

FIGURE 2.2 – Illustration de l'ajout d'un délai variable entre les impulsions pompe et sonde par déplacement d'une paire de miroirs.

Sonde faible et brève : on comprend aisément le besoin d'une impulsion sonde de faible intensité : le faisceau de lecture ne doit pas en lui-même perturber l'état de l'échantillon, ni interagir avec l'impulsion pompe. La durée d'impulsion au niveau de la région d'intérêt n'est pas critique, mais elle affecte directement la résolution de l'ensemble de l'expérience : la durée de l'impulsion sonde constitue un équivalent du temps d'intégration et *in extenso* de la résolution temporelle de la dynamique. Une expérience pompe-sonde femtoseconde est donc un outil permettant de très hautes résolutions temporelles grâce à la brièveté des impulsions mises en jeu.

Cependant la durée de l'impulsion de la sonde est très sensible à la dispersion temporelle induite par les éléments optiques, et ce d'autant plus que l'impulsion sonde possède un spectre large et qu'elle traverse des systèmes optiques épais. C'est particulièrement le cas en considérant les objectifs à haute ouverture numérique utilisés dans notre expérience pour injecter les faisceaux dans l'échantillon, qui approchent les 3 à 4 cm de verre au total.

Considérons l'exemple d'une impulsion sonde à $\lambda_s = 400$ nm possédant une largeur spectrale à mi-hauteur de 8 nm (typ. $\tau_s = 30$ fs au mieux), que l'on fera traverser un objectif de microscope introduisant une phase spectrale considérée comme purement quadratique, positive (dispersion normale) et estimée à $\varphi_2 = 10000$ fs^2.

La largeur à mi-hauteur temporelle du profil d'intensité de la sonde après prise en compte de la dispersion peut s'écrire de la façon suivante [160] :

$$\tau'_s = \tau_s \sqrt{1 + \frac{\varphi_2^2}{\tau_0^4}}. \tag{2.1}$$

L'impulsion dispersée possède alors une durée à mi-hauteur de $\tau'_s = 340$ fs, conduisant à une résolution temporelle dix fois moindre pour l'expérience pompe-sonde.

Une solution, afin d'annuler l'effet de la dispersion normale introduite par chacun des composants optiques traversés par le faisceau sonde, consiste à utiliser un compresseur. On utilise dans ces compresseurs des éléments dispersifs (prismes, réseaux, grismes...) utilisés par paires, disposés géométriquement de manière à modifier le chemin optique pour chaque longueur d'onde. Les longueurs d'onde les plus courtes, qui tendent à prendre de l'avance sur les plus longues sous l'effet de la dispersion normale, parcourent davantage de chemin dans le compresseur : on introduit l'équivalent d'une dispersion anormale.

La conception d'un compresseur se base généralement sur l'utilisation d'une paire de

réseaux [161], de prismes [162], ou de miroirs à dérive de fréquence (miroirs *chirpés* [163]) selon l'ordre de grandeur de la dispersion à compenser.

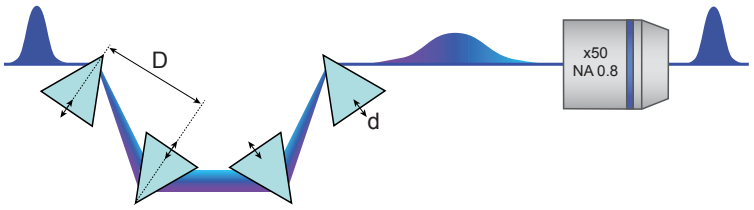

FIGURE 2.3 – Précompensation de la dispersion induite par un objectif de microscope grâce à un compresseur à prisme.

La figure 2.3 montre comment l'ajout d'un compresseur à prismes sur le trajet optique permet de pré-compenser la dispersion et de retrouver une impulsion dont la durée est limitée par la transformée de Fourier au plan focal d'un objectif de microscope. La distance de séparation entre prismes D_p permet d'ajuster la quantité de dispersion anormale, et la variation d'insertion d_p des prismes dans le faisceau permet de jouer finement sur la dispersion totale en ajoutant une faible quantité de dispersion normale par propagation dans une épaisseur de verre variable grâce à la géométrie du prisme.

2.1.2/ DÉLAI ABSOLU DANS UNE EXPÉRIENCE POMPE-SONDE HÉTÉRODYNE

Ce travail de thèse repose principalement sur la conception, la réalisation et l'exploitation d'une expérience pompe-sonde. Nous ne coupons donc pas à la nécessité de satisfaire aux trois hypothèses fortes établies précédemment. Le choix du phénomène à étudier étant déjà fait et ayant montré une répétabilité suffisante, nous nous concentrons alors sur l'obtention d'un délai pompe-sonde connu de manière absolue, et l'optimisation de la durée d'impulsion sonde au niveau de l'échantillon.

Il est tentant de considérer l'instant $t = 0$ du phénomène à étudier comme point de départ de sa dynamique. Ce temps "zéro" n'existe pas à proprement parler, aussi nous préférerons parler dans la suite de ce manuscrit de la condition $\tau = 0$, c'est-à-dire lorsque les enveloppes temporelles des impulsions pompe et sonde sont superposées.

Certaines équipes font le choix de définir arbitrairement $\tau = 0$ comme le délai pour lequel la première modification induite du milieu est observée [153, 164]. Cette solution repose sur deux hypothèses fortes : le seuil de détection de l'expérience doit être suffisamment bas (première variation distinguable due à la modification induite) et le phénomène à étudier ne doit pas comporter de dynamique à retard par rapport à la source d'excitation. Le choix de ce critère entraine souvent des incertitudes sur le temps absolu dans la dynamique en raison de l'extension temporelle de l'impulsion pompe, qui dès son front montant peut amorcer un modification du milieu.

Une expérience pompe-sonde hétérodyne possède l'avantage de faciliter la distinction et la séparation des deux faisceaux pompe et sonde par un simple filtrage fréquentiel (filtre passe-bande, miroir dichroïque...). Dans le cas d'une expérience d'imagerie, l'emploi d'une sonde de longueur d'onde courte permet d'améliorer la résolution spatiale (limitée à $\lambda/2$).

Le caractère hétérodyne rend cependant la question de la synchronisation délicate,

puisque les deux faisceaux pompe et sonde ne peuvent interférer. Pour établir avec une grande précision quel est le délai absolu séparant les impulsions, il devient nécessaire de les faire interagir par couplage au sein d'un matériau.

2.1.3/ L'OPTIQUE NON-LINÉAIRE AU SERVICE DE LA SYNCHRONISATION

Nous cherchons à mesurer l'espacement temporel de deux impulsions femtosecondes gaussiennes à deux fréquences différentes par couplage dans un milieu. Les interactions non-linéaires sont particulièrement bien adaptées pour les impulsions ultrabrèves puisque des fortes puissances instantanées sont atteintes, même pour des faibles énergies par impulsion.

C'est généralement par effets non-linéaires qu'on fabrique l'impulsion sonde à partir d'une réplique de l'impulsion pompe. Le cas le plus courant est celui du doublage de fréquence [149, 153, 154, 164–167], mais l'emploi des interactions paramétriques autorise un large panel de longueurs d'onde accessibles. Notre expérience reste dans le cas simple d'une génération de seconde harmonique, et nous recherchons une interaction non-linéaire permettant d'établir la position du délai pour deux impulsions à ω_p et $\omega_s = 2\omega_p$.

2.1.3.1/ INTERACTION NON-LINÉAIRE D'ORDRE 2

L'utilisation d'un milieu non-linéaire d'ordre 2 permet d'obtenir de manière assez simple une mesure de synchronisation de deux impulsions répliques l'une de l'autre et de pulsation ω (expérience pompe-sonde homodyne par exemple). Il suffit de mesurer l'intensité du signal émis à 2ω (génération de second harmonique, *Second Harmonic Generation* - SHG), qui s'écrit comme une autocorrélation $A_{\mathrm{SHG}}(t,\tau) = A(t)A(t-\tau)$. Le maximum du signal A_{SHG} donne la position pour laquelle le délai relatif entre impulsions est nul : nous obtenons ici le principe de fonctionnement d'un autocorrélateur.

Cette solution permet bien plus qu'une simple mesure de délai nul : en collectant le signal avec un spectromètre, nous pouvons remonter à la phase spectrale de l'impulsion $A(t)$ en utilisant un algorithme de reconstruction. Cette technique développée par l'équipe de R. Trebino [168, 169], plus connue sous le nom de FROG (Frequency-Resolved Optical Gating) possède une sensibilité de l'ordre de 1 pJ ce qui la rend accessible même aux impulsions de faibles amplitudes, et est adaptable aux impulsions sub-10 fs [170]. Cependant, la non-linéarité d'ordre 2 génère une ambiguïté sur le sens de la flèche du temps, du fait de la symétrie sur l'autocorrélation. Il est possible de supprimer cette ambiguïté en introduisant de la dispersion sur l'une des impulsions pour distinguer les deux répliques d'impulsion [171].

Cette technique n'est pas applicable à la restitution du délai nul dans notre expérience pompe-sonde, mais elle sera toutefois utilisée pour la caractérisation des signaux pompe et sonde indépendamment, par mesure FROG ou autocorrélation.

2.1.3.2/ INTERACTION NON-LINÉAIRE D'ORDRE 3

En utilisant un milieu non-linéaire d'ordre 3, de nombreuses variations de la technique FROG sont accessibles [172] et *in extenso* nous proposent de nouvelles configurations

optiques utilisées pour la synchronisation d'impulsions. L'ensemble de ces interactions peut être vu comme un mélange à 4 ondes.

Troisième harmonique (THG) La variante de l'autocorrélateur existe à l'ordre trois en réalisant un triplage de fréquence à partir de trois impulsions à ω (ou deux impulsions à ω et 2ω resp.). La mesure de l'intensité du signal de troisième harmonique permet alors la définition du délai nul : $A_{\mathrm{THG}}(t,\tau) \propto A(t)^2 A(t-\tau)$.

La THG est assez pratique pour l'obtention d'un critère au problème $\tau = 0$ par sa forte sensibilité temporelle au recouvrement en intensité des ondes incidentes [172] mais elle possède deux inconvénients majeurs. D'une part, toutes les ondes doivent être intenses pour parvenir à une génération de troisième harmonique sortant du bruit de mesure, ce qui est incompatible avec un faisceau sonde peu énergétique et ayant peu d'influence sur le milieu. D'autre part, des conditions d'accord de phase sont nécessaires à l'obtention du signal généré, ce qui impose des géométries optiques particulières et limite fortement son application pour les milieux isotropes où seules des conditions de quasi-accord de phase sont possibles.

Auto-diffraction (*self-diffraction*) Lors de sa propagation dans un milieu non-linéaire d'ordre 3, une impulsion induit une modification de l'indice de réfraction transitoire et proportionnelle à $A(t)A(t)^* = |A(t)|^2$. Pour deux ondes pompes non-colinéaires, un réseau d'intensité se forme dans le milieu et fait diffracter chacune de ces ondes sur le réseau auto-induit [168, 173]. Le signal auto-diffracté s'écrit alors : $A_{\mathrm{SD}}(t,\tau) \propto |A(t)|^2 A(t-\tau)$.

Polarization gating Lors de sa propagation dans un milieu non-linéaire d'ordre 3, une impulsion induit également une biréfringence transitoire proportionnelle à $A_p(t)A_p(t)^* = \left|A_p(t)\right|^2$ [174]. On considère ici l'observation du signal transmis pour un photon sonde traversant le milieu entre polariseurs croisés. Lorsque deux photons pompes issus d'une même onde sont temporellement superposés à un photon sonde, la biréfringence induite fait tourner la polarisation de la sonde et conduit à un signal transmis qui prend la forme $A_{\mathrm{PG}}(t,\tau) \propto \left|A_p(t)\right|^2 A_s(t-\tau)$ [169].

Cette technique est applicable dans bon nombre de milieux, mais bien que cette mesure se fasse sur fond sombre (polariseurs croisés) et permette une détection sensible, l'inconvénient majeur de cette méthode est que la biréfringence induite est relativement faible. La rotation de polarisation est cumulative avec la distance de propagation : cette technique s'applique donc préférentiellement à des échantillons épais (plusieurs centaines de microns, voire millimètre) afin de faire sortir le signal du bruit de mesure.

Réseau d'indice transitoire (*Transient grating*) De manière quasiment identique à l'auto-diffraction, nous pouvons considérer le cas à 3 ondes, où deux ondes pompes non-colinéaires induisent dans le milieu une modulation d'indice sous forme d'un réseau transitoire [168]. La troisième onde (onde sonde) possède un angle par rapport aux deux faisceaux pompes et diffracte sur ce réseau lorsque le délai pompe-sonde est suffisamment faible. Par la séparation angulaire existant entre pompes et sonde, le signal diffracté est spatialement séparé des autres. Le signal obtenu s'écrit de manière identique à celle du *polarization gating* [172] : $A_{\mathrm{TG}}(t,\tau) \propto \left|A_p(t)\right|^2 A_s(t-\tau)$.

2.1.3.3/ INTERCORRÉLATION POMPE-SONDE

Nous remarquons que les méthodes de *self-diffraction*, *polarization gating* ou *transient grating* sont équivalentes mathématiquement : elles se modélisent grâce une non-linéarité d'ordre 3 en faisant intervenir l'intercorrélation du type $A_{\text{signal}}(\tau, t) = A_1^2(t)A_2(t-\tau)$ où τ figure le délai relatif entre impulsions. La mesure du signal $A_{\text{signal}}(\tau, t)$ en fonction du délai τ permet alors de remonter au délai $\tau = 0$ et la connaissance *a priori* du profil d'enveloppe $A_1(t)$ autorise à en déduire le profil $A_2(t)$ (et réciproquement).

Entre chacune de ces méthodes, seules les configurations optiques diffèrent, permettant une flexibilité d'adaptation d'un même principe de fonctionnement à une expérience pré-existantes. Comparativement au *polarization gating* et à l'auto-diffraction, la technique du réseau d'indice transitoire est la plus sensible [172], avec 2 à 3 ordres de grandeur de gain en sensibilité sur l'énergie en régime de tir unique.

En combinant ces techniques avec une mesure spectrale, nous pouvons étendre la mesure FROG au cas sans ambiguïté temporelle, et obtenir ainsi des variations que l'on nomme respectivement SD-FROG [168, 172], PG-FROG [172, 175], TG-FROG [172, 176, 177] ou de manière générale X-FROG ou C-FROG du fait de l'intercorrélation à l'origine du signal mesuré. Un avantage notable des interactions d'ordre 3 est que l'onde portant le signal d'intérêt peut être obtenue à la même longueur d'onde que les ondes pompes. Ceci est particulièrement intéressant pour les courtes longueurs d'onde pour lesquelles il est parfois difficile de mesurer la seconde ou troisième harmonique. Les cas de l'auto-diffraction, du *polarisation gating* ou du *transient grating* sont particulièrement bien adaptés par exemple pour la caractérisation d'impulsions UV lointaines [178, 179].

Il est à noter également que pour les cas du *polarization gating* et du *transient grating*, l'onde sonde ne possède pas de conditions d'accord de phase avec l'onde pompe et peut par conséquence prendre une fréquence quelconque. Nous pouvons alors effectuer des mesures large bande [180, 181] allant même jusqu'au cas des supercontinuums [182, 183]. Ces techniques sont donc particulièrement bien adaptées pour la synchronisation des expériences pompe-sonde dont la sonde est accordable en longueur d'onde ou à large spectre.

2.1.4/ APPROCHE PROPOSÉE

Dans notre expérience, trois principales contraintes nous limitent dans les possibilités quant à la méthode permettant de remonter au délai absolu τ.

- L'intensité de l'impulsion sonde doit être faible, afin de ne pas influer sur l'état du milieu à sonder (par ionisation par exemple). Par conséquent, la sonde est peu efficace pour exciter un effet non-linéaire.
- Les milieux d'intérêt ne sont pas nécessairement propices aux effets non-linéaires (non-cristallins, faibles indices non-linéaires...).
- Les échantillons d'intérêt sont minces : l'épaisseur de quelques centaines de microns limite l'efficacité des effets non-linéaires qui s'intègrent sur la distance d'interaction.

L'objectif de ce chapitre est de présenter l'approche choisie pour permettre de s'affranchir de ces contraintes. Nous proposons ici d'utiliser en l'état notre montage pompe-sonde hétérodyne et de travailler directement dans l'échantillon d'intérêt. L'objectif est d'obtenir entre pompe et sonde un couplage non-linéaire indépendant de l'intensité et de la

longueur d'onde de la sonde, et pouvant être appliqué sur des échantillons de faible épaisseur.

Nous choisissons une approche de type *transient grating* qui se trouve être particulièrement bien adaptée à l'expérience déjà installée, en remplissant les trois critères énoncés précédemment et possédant une bonne sensibilité.

Grâce au système de mise en forme spatiale de l'impulsion pompe, nous pouvons induire par effet Kerr un réseau d'indice transitoire sur lequel le faisceau sonde diffracte lorsque le délai pompe-sonde le permet (figure 2.4). Le réseau d'indice n'impose pas de condition d'accord de phase entre les impulsions pompe et sonde, autorisant à travailler dans un milieu isotrope et sans poser de condition sur l'énergie de l'impulsion sonde. De plus en utilisant la loi des réseaux épais et les conditions de Bragg, nous nous assurons d'une efficacité de diffraction suffisante sur la longueur du réseau, permettant l'utilisation d'un milieu de faible épaisseur.

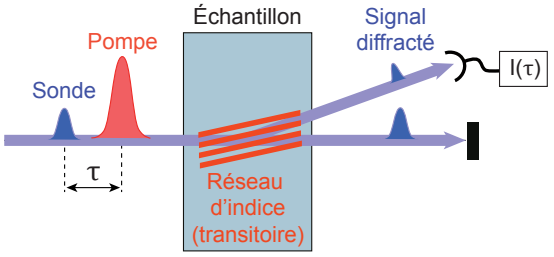

FIGURE 2.4 – Principe de la mesure de synchronisation à base d'un réseau d'indice transitoire induit. L'impulsion pompe mise en forme spatialement génère par effet Kerr un réseau d'indice transitoire dans le milieu. Pour des délais proches de $\tau = 0$, l'impulsion sonde diffracte sur le réseau d'indice transitoire. La mesure porte sur l'intensité du signal diffracté $I(\tau)$.

Notre étude se base donc sur la mesure du signal diffracté par le réseau d'indice transitoire, en fonction du délai pompe-sonde et des propriétés du réseau. Le signal diffracté portant l'information sur la convolution des profils temporels $I_s(t)$ et $I_p(t)$, nous pourrons ainsi remonter à la fois au délai nul et à l'un des profils temporels en supposant l'autre connu.

2.2/ RÉSEAU TRANSITOIRE D'INDICE PAR EFFET KERR

2.2.1/ EFFET KERR OPTIQUE

Lors de la propagation d'une onde optique intense dans un milieu, les processus de couplage onde-matière ne peuvent plus être négligés et un terme de polarisation induite du milieu $\mathbf{P}$ doit être introduit pour tenir compte de la réponse du milieu.

L'équation de propagation du champ $\mathbf{E}$ s'écrit :

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) + \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = -\mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \tag{2.2}$$

L'ensemble de la réponse du milieu est alors contenu dans $\mathbf{P}$ que l'on définit par $\mathbf{P} = \varepsilon_0 \chi \mathbf{E}$, où χ est un tenseur d'ordre 3. On écrit généralement la polarisation $\mathbf{P}$ comme une

expansion de Taylor permettant d'identifier ses différents ordres :

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}^{(1)} + \mathbf{P}^{(2)} + \mathbf{P}^{(3)} + \dots$$

On considère qu'un seul faisceau est incident sur le milieu. Pour un champ $\mathbf{E}$, on traite le cas d'un faisceau polarisé linéairement : nous passons alors en notation scalaire $E(t)$ et la polarisation $\mathbf{P}$ devient :

$$P = \varepsilon_0\chi^{(1)}E + \varepsilon_0\chi^{(2)}EE + \varepsilon_0\chi^{(3)}EEE + \dots$$

dans laquelle les $\chi^{(n)}$ sont les tenseur de susceptibilité du n-ième ordre. Le terme $\chi^{(1)}\mathcal{E}$ correspond à la réponse linéaire du milieu, et tous les termes suivants caractérisent le régime non-linéaire. Au terme linéaire, on associe l'indice optique n_0 du milieu qu'on définit par :

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

Dans les milieux possédant des propriétés de symétrie centrale, comme c'est le cas pour le verre qui est un milieu isotrope, les termes $\chi^{(n)}$ s'annulent pour les n pairs pour des raisons de symétrie. Le premier terme non-linéaire à apparaître est une contribution liée à $\chi^{(3)}$.

Le terme $P^{(3)}$ représente les effets non-linéaires d'ordre 3. Sous une excitation monochromatique, en introduisant le champ complexe $\mathcal{E}$ défini par $E = \frac{1}{2}(\mathcal{E} + \mathcal{E}^*)$, deux fréquences propres en émergent :

$$\begin{aligned} P^{(3)} &= \varepsilon_0\chi^{(3)}E^3 \\ &= \tfrac{\varepsilon_0\chi^{(3)}}{8}(\underbrace{E^3 + E^{*3}}_{3\omega} + \underbrace{3E^*E^2 + 3E^{*2}E}_{\omega}) \end{aligned}$$

On peut identifier deux phénomènes distincts présentant chacun un accord de phase différent :

— triplage de fréquence : $\omega + \omega + \omega = 3\omega$
— effet Kerr : $\omega + \omega - \omega = \omega$

On supposera les termes en E^3(triplage de fréquence) comme négligeables, car les milieux mis en jeu dans ce chapitre ne sont pas propices à l'accord de phase à 3ω. En revanche l'accord de phase pour l'effet Kerr est automatiquement vérifié :

$$\Delta k(\omega) = k(\omega) - [k(\omega) + k(\omega) - k(\omega)] = 0.$$

L'effet Kerr [32] peut être interprété physiquement (sous une excitation femtoseconde) comme la déformation des nuages électroniques du milieu par le champ électromagnétique E. La mobilité des charges étant très grande au sein du nuage électronique, on peut raisonnablement considérer que le temps de réponse de l'effet Kerr est quasiment instantané (typiquement 1-10 fs dans le verre, [184, 185]) : E et $P^{(3)}$ évoluent donc en phase. En notation complexe, la polarisation non-linéaire au 3^e ordre s'écrit alors :

$$\mathcal{P}^{(3)} = \frac{3}{4}\varepsilon_0\chi^{(3)}|\mathcal{E}|^2\mathcal{E} \tag{2.3}$$

En considérant le cas scalaire de l'équation de propagation (2.2) dans le cas monochromatique, on voit émerger l'équivalent d'un nouvel indice de réfraction, induit par l'effet Kerr :

$$\begin{aligned} \Delta\mathcal{E} - \frac{n_0^2}{c^2}\frac{\partial^2\mathcal{E}}{\partial t^2} &= \mu_0\frac{\partial^2\mathcal{P}^{(3)}}{\partial t^2} \\ &= \mu_0\frac{\partial^2}{\partial t^2}\left(\varepsilon_0\tfrac{3}{4}\chi^{(3)}|\mathcal{E}|^2\mathcal{E}\right) \end{aligned}$$

$$\Delta\mathcal{E} - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\left(n_0^2 + \frac{3}{4}\chi^{(3)}|\mathcal{E}|^2\right)\mathcal{E} = 0 \tag{2.4}$$

On décrit alors la réponse d'un milieu Kerr à une excitation E par un indice non-linéaire tel que :

$$n^2 = n_0^2 + \frac{3}{4}\chi^{(3)}|\mathcal{E}|^2$$

Dans le cas où $\sqrt{\frac{3}{4}\chi^{(3)}|\mathcal{E}|^2} \ll 1$ qui correspond au régime considéré dans ce chapitre, on linéarise n sous la forme :

$$n = n_0\left(1 + \frac{\frac{3}{4}\chi^{(3)}|\mathcal{E}|^2}{2n_0}\right)$$

Ce qui nous conduit à la forme générale de l'indice dans les milieux Kerr, dont la conséquence directe est la dépendance en temps et espace de n, du fait de la distribution spatio-temporelle de $|\mathcal{E}|^2$:

$$n(x, y, z, \omega, t) = n_0(\omega) + n_2(\omega)I(x, y, z, t) \tag{2.5}$$

en posant $I = |\mathcal{E}|^2$, $n_2 = \frac{3\chi^{(3)}}{8n_0}$ et en supposant $n_2 \ll n_0$.

Dans le verre (silice fondue), on a $n_2(\mathrm{SiO_2}) = 4.10^{-16}$ cm^2. W^{-1} [184, 186, 187] pour λ = 800 nm ce qui signifie que l'hypothèse $n_2 \ll n_0$ reste valide tant que $I \ll 6.10^{15}$ W. cm^{-2}. Cette hypothèse est vérifiée dans tous les milieux et gammes d'intensité de notre étude car les intensités mises en jeu se situent dans le domaine 10^{12-13} W.cm^{-2}.

Le coefficient n_2 prend des valeurs le plus souvent positives dans les milieux transparents : le champ incident tend à faire croitre l'indice localement dans les zones où l'intensité est la plus forte. Ceci permet d'expliquer les effets comme les lentilles Kerr (autofocalisation) [33–35] conduisant par exemple à la filamentation [6].

2.2.2/ CAS POMPE-SONDE : EFFET KERR CROISÉ

Dans notre expérience, on compte sur l'induction d'un réseau d'indice par l'onde pompe $\mathbf{E}_p$, tandis que l'onde sonde de faible intensité $\mathbf{E}_s$ diffracte sur cette structure. C'est donc un effet Kerr croisé qu'il faut modéliser. La polarisation non-linéaire $P^{(3)}$ fait apparaître un grand nombre de termes, dont la majorité est négligeable dans notre cas :

$$P^{(3)} = \frac{\varepsilon_0\chi^{(3)}}{8}(\mathcal{E}_p + \mathcal{E}_p^* + \mathcal{E}_s + \mathcal{E}_s^*)^3$$

On s'intéresse ici à l'onde sonde diffractée, c'est-à-dire au cas d'un accord de phase respecté pour une onde en ω_s. Ceci limite les termes de $P_s^{(3)}$ aux permutations de $\mathcal{E}_p\mathcal{E}_p^*\mathcal{E}_s$ et $\mathcal{E}_s\mathcal{E}_s^*\mathcal{E}_s$:

$$\mathcal{P}_s^{(3)} = \frac{3\varepsilon_0\chi^{(3)}}{4}\left(|\mathcal{E}_s|^2 + 2\left|\mathcal{E}_p\right|^2\right)\mathcal{E}_s$$

On considère que $\left|\mathcal{E}_p\right|^2 \gg |\mathcal{E}_s|^2$, comme c'est le cas dans notre expérience : le rapport des énergies E_p et E_s est de l'ordre de 10^{2-3}, et la sonde est spatialement étendue contrairement à la pompe qui se focalise sous la forme d'un réseau d'intensité. En conséquence, on néglige le premier terme en $|\mathcal{E}_s|^2\mathcal{E}_s$:

$$\mathcal{P}_s^{(3)} = \frac{6\varepsilon_0\chi^{(3}}{4}\left|\mathcal{E}_p\right|^2\mathcal{E}_s \tag{2.6}$$

La variation d'indice vue par le faisceau sonde est donc double de celle vue par la pompe et l'indice $n(\omega_s)$ prend la forme suivante :

$$n(x,y,z,\omega_s,t) = n_0(\omega_s) + 2n_2(\omega_p)I_p(x,y,z,t) \tag{2.7}$$

2.2.3/ RÉALISATION D'UN RÉSEAU D'INDICE TRANSITOIRE

En exploitant l'effet Kerr, nous pouvons convertir un réseau d'intensité $I(x,y,z,t)$ en un réseau d'indice $n(x,y,z,t) = n_0 + \delta n(t)$, dont le profil temporel $\delta n(t)$ possède une largeur à mi-hauteur équivalente à l'intensité $I_p(t)$. L'enjeu est alors la mise en forme spatiale de l'impulsion pompe, permettant de faire prendre à $\delta n(x,y,z)$ la forme désirée.

Nous reprenons ici le principe du biprisme de Fresnel (équivalent réfractif du bimiroir de Fresnel [188]), permettant à partir d'une interférence à deux ondes d'obtenir un réseau d'intensité dont le pas et l'orientation sont contrôlés par les angles relatifs à l'axe optique de chacune des ondes.

La mise en forme du faisceau est réalisée de manière identique à celle utilisée lors des mesures pompe-sonde auxquelles l'expérience est dédiée : un masque de phase à deux rampes de phase, remplissant le rôle du biprisme, est affiché sur le SLM et le télescope de grandissement M situé en aval permet d'augmenter l'angle afin d'atteindre des densités de puissances suffisantes au niveau de l'échantillon. La flexibilité du SLM nous permet d'ajuster à volonté le pas du réseau Λ via l'angle du biprisme virtuel θ_{SLM} (correspondant à θ dans l'échantillon) et l'ajout d'une rampe de phase supplémentaire liée à un angle α_{SLM} nous permet de jouer sur l'angle α du réseau dans l'échantillon par rapport à l'axe optique. On obtient les relations suivantes (angles donnés dans l'air) :

$$\begin{cases} \theta &= M \times \theta_{SLM} \\ \alpha &= M \times \alpha_{SLM} \\ \Lambda &= \frac{\lambda_p}{2n_0 \sin\theta} \end{cases}$$

De manière à obtenir une efficacité de diffraction optimale, le couple (Λ, α_{SLM}) est choisi pour satisfaire à la condition de Bragg [189], pour laquelle on a une relation de phase permettant une interférence constructive entre deux rayons diffractés dans deux plans successifs p et $p+1$ du réseau. En respectant strictement la condition de Bragg, seul le

premier ordre de diffraction subsiste [190] en plus de l'ordre 0 (non-diffracté). Il s'agit du régime pour lequel l'efficacité η_1 est maximale, puisque que pour un réseau de contraste 1, il est théoriquement possible de transférer l'intégralité de l'énergie dans l'ordre 1 [1].

Cette condition de Bragg s'écrit pour l'impulsion sonde :

$$\lambda_s = 2n_0\Lambda \sin\alpha \tag{2.8}$$

Pour un demi-angle θ donné entre les deux ondes pompe, on a donc un pas du réseau Λ fixé et l'accord de l'angle de Bragg est possible par la rotation du réseau d'un l'angle α tel que :

$$\begin{aligned} \sin\alpha &= \frac{\lambda_s}{2n_0\Lambda} \\ &= \frac{\lambda_s}{\lambda_p}\sin\theta \end{aligned}$$

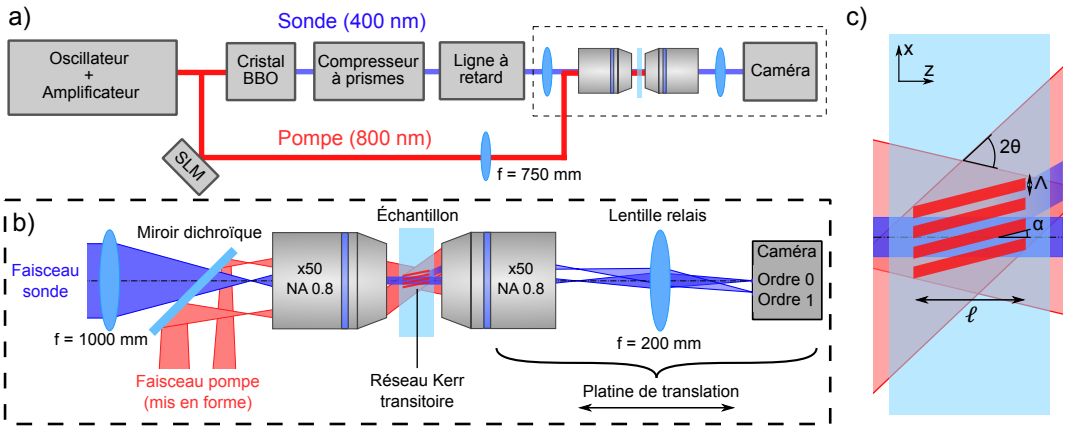

FIGURE 2.5 – Schéma de l'expérience de génération d'un réseau transitoire d'indice par effet Kerr. a) Schéma bloc du montage expérimental. b) Zoom sur l'aire pointillée en (a), illustrant la zone d'interaction pompe-sonde et sur le système d'imagerie dans l'espace de Fourier. c) Vue au niveau de l'échantillon, dans lequel le réseau d'indice (en rouge) fait diffracter le faisceau sonde (bleu). Λ représente le pas du réseau d'indice, ℓ sa longueur, α son inclinaison par rapport à l'axe optique et θ le demi-angle de croisement des faisceaux pompe.

Le montage expérimental qui sera utilisé dans ce chapitre présente l'avantage important d'être identique à la configuration utilisée en imagerie pompe-sonde (fig. 2.5.a). Deux différences mineures existent toutefois :

— L'observation se fait en champ lointain : la lentille de 400 mm, placée en configuration télescopique 4*f* avec l'objectif de microscope, est remplacée par une lentille de focale deux fois plus courte, en configuration de Bessel (2*f*-2*f* donnant un grandissement de -1) et servant ainsi de lentille relais. [2]

— Le bras de référence de l'interféromètre sur la ligne sonde n'est pas utilisé ici. Son trajet est bloqué juste après la première lame séparatrice de l'interféromètre de Mach-Zehnder.

1. C'est d'ailleurs ce régime qui est utilisé dans les modulateurs acousto-optiques, qui se comportent également comme des réseaux d'indice transitoire.

2. Les deux lentilles sont interchangeable par une monture magnétique et le passage d'une configuration à l'autre ne nécessite aucun déplacement des optiques.

La figure 2.5.b montre la configuration optique à proximité de l'échantillon ; on y voit particulièrement la méthode de recombinaison des faisceaux pompe et sonde, et la collection du faisceau sonde pour imagerie en champ lointain. Le faisceau pompe collecté (non-représenté) est filtré avant d'atteindre la caméra. La figure 2.5.c détaille au niveau de l'échantillon le principe de la diffraction sur un réseau transitoire d'indice, induit par une impulsion pompe mise en forme et incliné d'un angle α par rapport à l'axe optique de manière à satisfaire à la condition de Bragg.

Les profils longitudinaux normalisés des faisceaux pompe et sonde sont présentés en figure 2.6. On peut simuler le profil d'intensité du faisceau pompe par un code de propagation linéaire, en tenant compte du profil spatial du faisceau incident, du masque de phase appliqué sur le SLM et du grandissement du télescope réalisant l'image du SLM dans l'échantillon. Le profil simulé (fig 2.6.a) correspond fidèlement au profil expérimental (b) mesuré en imageant plan par plan le faisceau mis en forme (dans l'espace direct).

Le faisceau sonde possède en entrée de système un profil spatial gaussien, que l'on réduit par un télescope de grandissement $\times 278$, conduisant à un faisceau dont la demi-largeur à mi-hauteur w_0 est de 7,5 µm. Son profil est donné en (c), en l'absence de faisceau pompe. La longueur de Rayleigh associée $z_R = \pi w_0^2/\lambda_s$ = 440 µm est grande devant l'extension longitudinale du réseau : on peut raisonnablement considérer que le faisceau sonde est collimaté sur l'ensemble du réseau d'indice.

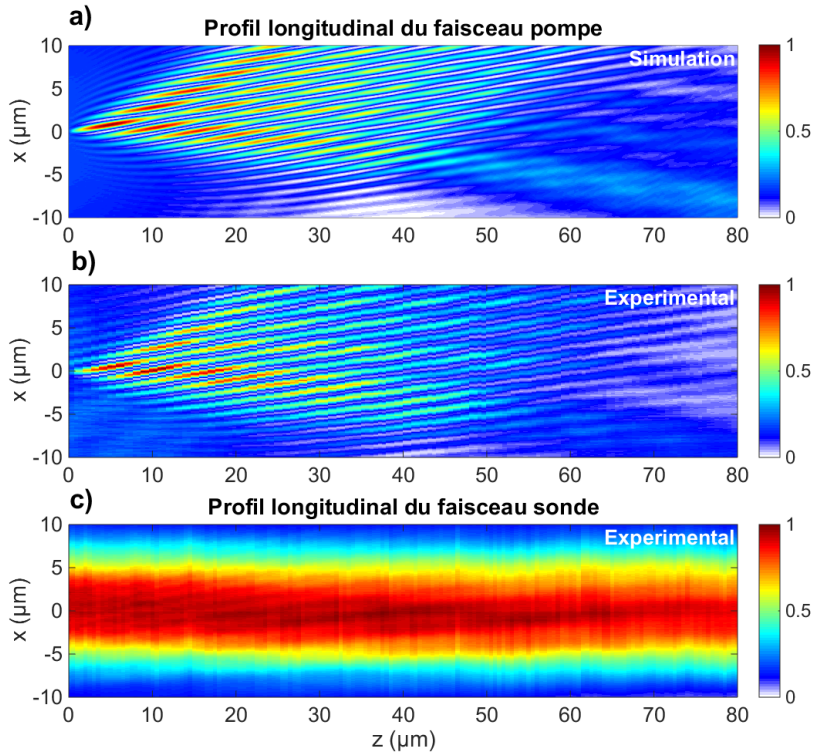

FIGURE 2.6 – Profils longitudinaux des faisceaux pompe (a-b) et sonde (c) pour θ = 20° et α = 10 °. La comparaison des profils numérique (a) et expérimental (b), montre la très bonne correspondance et la possibilité de modéliser fidèlement le profil d'intensité, et *in extenso* le profil d'indice transitoire attendu.

Limites quant à la génération du réseau d'indice Angulairement, nous sommes principalement contraints par les ouvertures numériques des objectifs de microscope utilisés dans le montage présenté en figure 2.5. L'ouverture numérique des objectifs dans ce chapitre est de 0,8, limitant les angles maximum acceptés à 53° dans l'air. L'angle maximum des faisceaux se trouve à $(\alpha + \theta)$. Le respect des angles de Bragg nous impose $\theta = 2\alpha$ ce qui signifie que θ est plafonné à $\theta_{max} = 35°$ dans l'air.

Un objectif, à l'instar d'une lentille mince, réalise une opération de transformée de Fourier entre ses plans focaux. La transformée de Fourier des deux ondes à l'origine du réseau d'intensité dans l'échantillon se trouve être théoriquement la convolution d'un pic de Dirac par une gaussienne, d'autant plus piquée spatialement que les deux faisceaux s'approchent de deux ondes planes. On atteint l'intensité maximale dans l'expérience au niveau de la lentille arrière des objectifs, limitant ainsi la plage d'intensité accessible au niveau de l'échantillon.

Nous nous limitons par soucis de sécurité des optiques à une intensité maximale de 10^{13} W/cm^2 au niveau de la face arrière de l'objectif de focalisation, c'est-à-dire pour une énergie de 1 µJ environ. Dans ce chapitre, l'énergie usuelle employée est de 0,1 µJ suffisant largement à faire sortir le signal diffracté du bruit de mesure.

2.2.4/ EXPRESSION DU SIGNAL DIFFRACTÉ

Nous nous intéressons à l'efficacité de diffraction η de l'onde sonde (qu'on suppose monochromatique) sur un réseau d'indice de pas Λ, de longueur effective ℓ, d'amplitude de modulation d'indice δn et dont l'angle α par rapport à l'axe optique satisfait les conditions de Bragg. On suppose que la modulation d'indice est purement réelle et que la diffraction s'effectue sans pertes dans le milieu. Comme $\ell/\Lambda \gg 1$, le réseau de diffraction est un réseau épais : le signal diffracté peut être décrit par la théorie de Kogelnik [191]. Dans cette approche, nous considérons les dimensions finies du réseau et les effets de désaccord (*detuning*) sont pris en compte aussi bien pour la fréquence centrale que pour l'angle.

De manière générale, on définit l'efficacité η_m par le rapport de l'amplitude incidente A_I et de l'amplitude diffractée A_m dans l'ordre m par :

$$\eta_m = \frac{|A_m|^2}{|A_I|^2}$$

Dans le cas de l'ordre 1 à l'angle de Bragg, on peut relier η_1 aux paramètres du réseau [191] :

$$\eta_1 = \sin^2\left(\frac{\pi \ell \delta n}{\lambda_p \cos\alpha}\right) \tag{2.9}$$

On peut alors exprimer l'intensité du signal diffractée $\Sigma(\tau)$ pour un délai τ donné, en fonction de la modification d'indice induite :

$$\begin{aligned} \Sigma(\tau) &= \int |A_1(\tau, t)|^2 dt \\ &= \int I_s(t-\tau) \sin^2\left(\frac{\pi \ell \delta n(t)}{\lambda_p \cos\alpha}\right) dt \end{aligned}$$

Lorsque $\delta n \ll \lambda_p/\ell\cos\alpha$, c'est-à-dire lorsque la phase accumulée sur l'épaisseur du réseau est négligeable devant la projection de la longueur d'onde sur l'axe optique z (en d'autres mots, le déphasage introduit par l'effet Kerr est faible), on peut linéariser l'expression de $\Sigma(\tau)$. Dans notre cas, δn est de l'ordre de 10^{-3} : $\delta n(t) = 2n_2 I_p(t)$ avec $n_2 \approx 10^{-16}$ cm^2.W^{-1} et $\max(I_p) \approx 10^{13}$ W.cm^{-2} dans le cas du réseau induit.

Comme $\lambda_p/\ell\cos\alpha = 1,6.10^{-2}$ dans notre cas, il est raisonnable de linéariser l'intercorrélation entre le carré de l'intensité de la pompe et celle de la sonde (en écrivant $\delta n(t) = 2n_2 I_p(t)$) :

$$\Sigma(\tau) \propto \left(\frac{2n_2}{\lambda_p \cos\alpha}\right)^2 \int I_p^2(t) I_s(t-\tau) dt \tag{2.10}$$

Sauf mention contraire, les résultats expérimentaux donnés par la suite ont été mesurés pour θ = 20° et α = 10°. Le choix de ces valeurs a été fait pour réaliser un compromis sur la séparation des ordres de diffractions (meilleure séparation pour θ grand) et l'efficacité de diffraction liée à la longueur du réseau dans le volume (η_1 plus grand pour θ faible).

2.2.5/ MESURE DU SIGNAL DIFFRACTÉ

L'ensemble du travail expérimental est réalisé pratiquement avec le même montage optique que pour l'expérience pompe-sonde décrite dans le chapitre précédent (fig. 2.5.a). Le système d'imagerie n'est toutefois pas en configuration de microscopie directe, mais travaille dans l'espace de Fourier : la lentille placée entre l'objectif de collection et la caméra sert de lentille relais et permet d'imager sur la caméra le plan image de l'objectif.

Le schéma bloc de principe est présenté en figure 2.5.b. L'échantillon placé entre les objectifs de microscope est une lame de verre ou de saphir, et constitue le milieu Kerr dans lequel on forme le réseau d'indice.

La mesure de $\Sigma(\tau)$ est possible en collectant le signal diffracté par le réseau et en l'isolant du signal sonde non-diffracté (ordre 0 du réseau) et du signal pompe. Un objectif à grande ouverture numérique (NA = 0,8) collecte l'ensemble des faisceaux émergeant de l'échantillon, et on trouve à son plan image leur transformée de Fourier (les plans objet et image d'une lentille sont conjugués par transformée de Fourier). En utilisant une lentille relais, on réalise l'image de ce plan de Fourier sur la caméra avec un grandissement de -1.

On mesure alors 4 taches sur la caméra correspondant aux contributions des faisceaux pompe et sonde, comme montré en figure 2.7. L'image correspond à la partie de la caméra sur laquelle se trouvent nos signaux. Elle est volontairement saturée pour laisser apparaître les contributions les plus faibles. Les angles repérés sur l'axe θ_x sont donnés par rapport à l'axe optique, selon l'axe vertical x. Les angles sont orientés positivement pour des spots situés sous le point θ_x = 0 pour correspondre aux angles au sein de l'échantillon (le grandissement -1 dû à la lentille relais renverse les conventions prises au niveau de l'échantillon).

Les deux spots aux extrêmes correspondent aux deux ondes planes du faisceau pompe, et leur position sur la caméra correspond aux angles $\alpha \pm \theta$ selon l'axe vertical. Leur barycentre commun est représenté par une croix rouge, dont la position est donc à l'angle α.

Le faisceau sonde est orienté selon l'axe z, c'est-à-dire à l'angle $\theta_x = 0$. Pour plus de clarté, la zone autour du signal diffracté dans l'ordre 1 a été enregistrée vers une exposition cent fois plus longue et pour un délai $\tau = 0$, c'est-à-dire lorsque l'efficacité de diffraction est maximale, pour laisser apparaître clairement le spot diffracté. L'ordre 1 de diffraction possède un angle θ_Σ par rapport à l'axe optique. On s'aperçoit que $\theta_\Sigma = 2\alpha = \theta$, ce qui nous assure que nous sommes bel et bien à l'angle de Bragg.

Nous remarquons également que les faisceaux pompe et sonde possèdent un angle relatif selon l'axe y. Au niveau de l'échantillon cet angle est de 3° et provient d'un léger désalignement en amont des télescopes réducteurs : avant le télescope, l'erreur d'angle correspondante est de seulement 250 µrad si l'on prend le signal sonde comme référence pour l'axe optique (ou 180 µrad avec la pompe comme référence). Cet angle tombe dans la tolérance d'alignement et est sans incidence sur les effets de diffraction par le réseau.

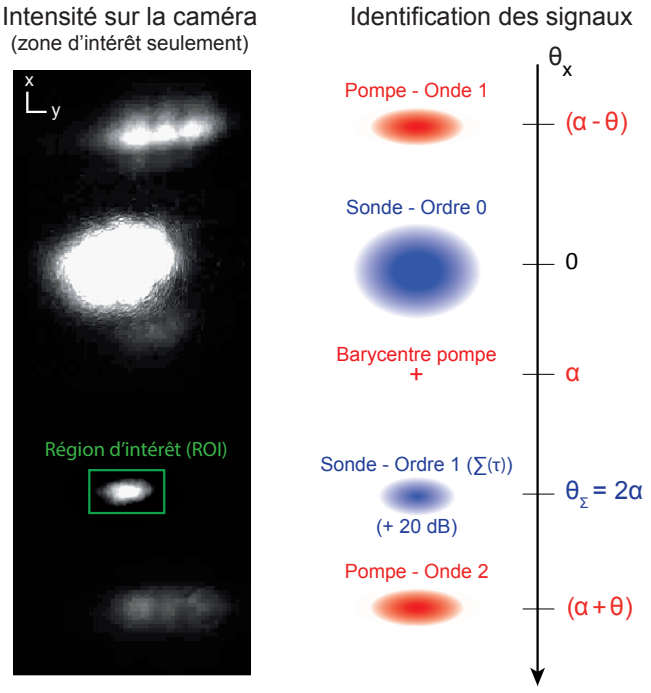

FIGURE 2.7 – À gauche : portion de l'image collectée sur la caméra lors de la mesure du signal diffracté, lorsque $\tau = 0$ et en absence de filtres (image saturée pour l'illustration). En vert, la zone sur laquelle on intègre le signal mesuré, permettant de remonter à $\Sigma_{exp}(\tau)$. À droite : schéma d'identification des différentes contributions, ainsi que l'axe des angles selon l'axe vertical de la caméra x, mettant en évidence la diffraction à l'angle de Bragg : $\theta_x(\Sigma) = 2\alpha = \theta$.

Afin d'éliminer les contributions autres que $\Sigma(\tau)$, on réalise une double opération de filtrage. Un premier filtrage fréquentiel, par un couple [miroir dichroïque, filtre passe-bande] à 400 nm permet une atténuation de 70 dB du signal pompe, le réduisant au niveau du bruit. Un second filtrage, spatial cette fois, est mis en place par l'ajout d'une lame de rasoir quelques millimètres en amont de la caméra et qui occulte l'ordre 0. Le seul signal résultant est l'ordre 1, diffracté par le réseau transitoire.

Le signal $\Sigma(\tau)_{exp}$ est mesuré grâce à l'intégrale de l'intensité sur une zone de $\approx 10^4$ pixels (typiquement 200 $\times$ 80 pixels), représentée par un rectangle vert sur la figure 2.7 et

englobant l'ensemble du spot sur la caméra :

$$\Sigma(\tau)_{exp} = \sum_{ROI} I_{ordre1}(\tau) \tag{2.11}$$

2.3/ DIFFRACTION SUR LE RÉSEAU D'INDICE TRANSITOIRE

2.3.1/ INFLUENCE DE L'ÉNERGIE DE LA POMPE

Dans un premier temps, on cherche à vérifier le comportement du signal diffracté vis à vis de notre modèle du signal diffracté $\Sigma(\tau)$ donné en équation (2.10). Nous réalisons une série de mesures du signal diffracté pour plusieurs énergies de pompe E_p. L'énergie par impulsion étant proportionnelle à l'intégrale dans le temps de l'intensité instantanée $I_p(t)$, on s'attend à une dépendance quadratique de l'amplitude du signal $\Sigma(E_p)$:

$$\Sigma(\tau) \propto \int I_p^2(t) I_s(t-\tau) dt.$$

Nous traçons en figure 2.8 l'évolution des profils $\Sigma(\tau)$ et $\Sigma(E_p)$ pour une mesure dans le verre (borosilicate Schott D263).

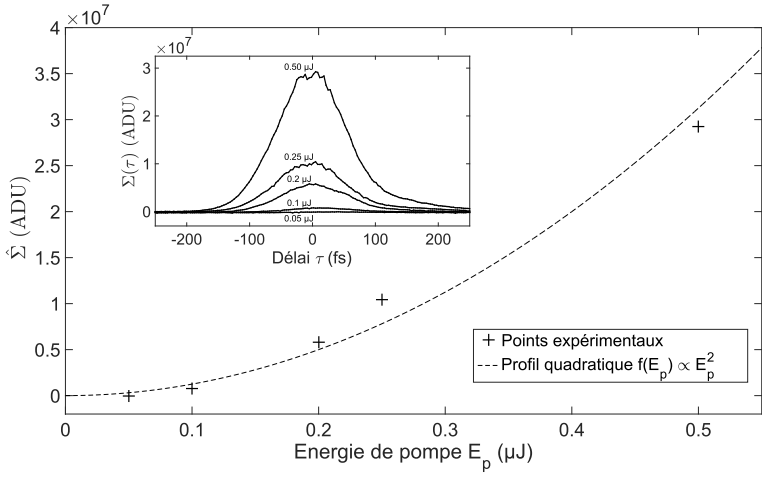

FIGURE 2.8 – Évolution du signal diffracté pour différentes énergies de pompe, dans le verre (Schott D263). En insert, les courbes $\Sigma(\tau)$ pour des énergies de 50 à 500 nJ. L'amplitude de Σ suit un profil quadratique en E_p^2, caractéristique de l'effet Kerr à l'origine du couplage avec l'impulsion sonde.

Le délai τ est donné centré autour de la valeur $\tau = 0$, et on peut voir que le signal d'intercorrelation $\Sigma(\tau)$ ne change pas de largeur avec la variation de E_p. L'amplitude de Σ varie quant à elle fortement, et le tracé de $\Sigma(E_p)$ est compatible avec un profil purement quadratique en énergie de pompe. Une mesure dans le saphir conduit à des résultats identiques.

2.3.2/ INFLUENCE DE LA POLARISATION

L'effet Kerr, bien que souvent exprimé de manière scalaire, possède une dépendance vis à vis des axes de polarisation des impulsions. Sommairement, on peut résumer l'effet du

tenseur $\chi^{(3)}$ par un indice n_2 effectif pour le faisceau “lisant” la modification d'indice. Dans notre cas, c'est l'état de polarisation relative qui joue : on distingue alors les contributions non-linéaires pour lesquelles les polarisations pompe et sonde sont parallèles ($\mathcal{P}^{(3)}_{\parallel}$) ou perpendiculaires ($\mathcal{P}^{(3)}_{\perp}$).

Expérimentalement, l'influence de la polarisation est flagrante : lorsque les polarisations sont parallèles, l'efficacité de diffraction est optimale, tandis qu'elle chute fortement pour des polarisations croisées. La figure 2.9 présente cette influence : en comparant la courbe de la première colonne (cas colinéaire) et celle de la deuxième colonne (cas croisé, en pointillé le rappel du cas colinéaire), nous constatons une chute de l'efficacité de diffraction. En multipliant la courbe du cas croisé par un facteur 6, on retrouve fidèlement le profil colinéaire. Une mesure identique a été réalisée dans le verre, conduisant également à un facteur 1/6 sur l'amplitude du signal diffracté selon les polarisations du signal sonde.

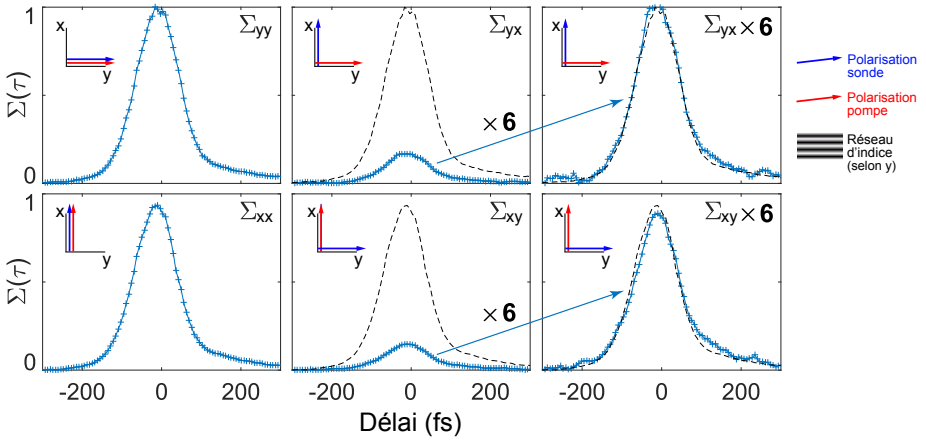

FIGURE 2.9 – Influence de la polarisation des deux impulsions sur l'efficacité de diffraction, pour un réseau selon l'axe y dans le saphir. Pour chaque ligne, la polarisation pompe est conservée fixe, et nous faisons tourner la polarisation sonde. En pointillé est rappelée la courbe du premier graphe de la ligne ($\Sigma_{mm}, m = x, y$). L'ensemble des graphes est normalisé de manière uniforme. La dernière colonne représente le signal de la colonne centrale après multiplication par un facteur 6.

Nous avons également étudié l'influence de l'orientation du réseau par rapport aux polarisations (l'orientation du réseau est définie ici par la direction des franges dans un plan xy) : on retrouve des résultats similaires pour un réseau orienté en x ou y. L'orientation du réseau ne possède donc pas d'influence et ce sont les termes $\mathcal{P}^{(3)}_{\perp}$ et $\mathcal{P}^{(3)}_{\parallel}$ de l'effet Kerr qui jouent un rôle dans le lien entre $\Sigma_{\perp}$ et $\Sigma_{\parallel}$.

Théoriquement la réponse de l'effet Kerr croisé est effectivement anisotrope (même dans les milieux isotropes) et les variations d'indice résultant des cas colinéaire $n_{2\parallel}$ et croisé $n_{2\perp}$ vérifient la relation $n_{2\parallel} = 3n_{2\perp}$ [192, 193]. De ce fait, on a un rapport d'efficacité théorique $\Sigma_{\perp}/\Sigma_{\parallel} = (n_{2\perp}/n_{2\parallel})^2 = 1/9$.

Nous pouvons supposer une dépendance du rapport expérimental avec l'angle θ de croisement des faisceaux pompe, puisque la projection de la polarisation pompe sur l'axe z dépend de θ. Dans le cas d'un réseau dont les franges sont orientées selon y, le faisceau pompe possède un angle $\theta_x = (\alpha \pm \theta)$ non-nul par rapport à l'axe optique : le cas polarisé en entrée selon y reste purement polarisé selon y au niveau de l'échantillon, alors que pour une polarisation d'entrée selon x le champ $\mathcal{E}$ au niveau de l'échantillon possède une

composante sur z :

$$\text{Pompe polarisée selon } x : \mathcal{E} = \begin{cases} \mathcal{E}_0 \sin(\theta) \\ 0 \\ \mathcal{E}_0 \cos(\theta) \end{cases} \quad \text{Pompe polarisée selon } y : \mathcal{E} = \begin{cases} 0 \\ \mathcal{E}_0 \\ 0 \end{cases}$$

Dans le cas d'une pompe partiellement polarisée selon l'axe z (réseau selon y, polarisation pompe selon x), apparait donc dans l'expression de Δn le terme $\cos^2\theta$. Le rapport devient alors $\Sigma_\perp/\Sigma_\parallel = (1/3cos^2\theta)^2 = 1/(9.cos^4\theta)$. En revanche, le cas d'une pompe polarisée selon y pour un réseau orienté également selon y n'est pas expliqué par cette approche : dans ce cas la pompe ne possède pas de projection selon z, le rapport théorique devrait donc être de 1/9.

Néanmoins nous observons le comportement expérimental du signal diffracté et nous mesurons le rapport $\Sigma_\perp/\Sigma_\parallel$ pour différents angles θ compris entre 12 et 26° (figure 2.10 et table 2.1).

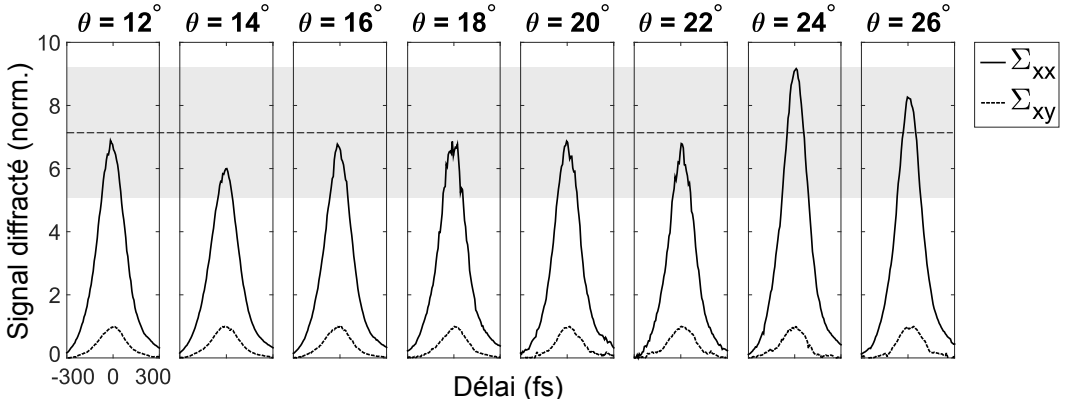

FIGURE 2.10 – Mesure des signaux diffractés en configuration de polarisation colinéaire Σ_{xx} et perpendiculaire Σ_{xy}, pour différents angles de croisement θ des ondes pompe (θ donné dans l'air). Le signal diffracté est normalisé par Σ_{xy} afin de comparer directement les ratios $\Sigma_\perp/\Sigma_\parallel$. La ligne pointillée et la plage grisée présentent le ratio moyen et sa barre d'erreur.

Angle θ (°)	12	14	16	18	20	22	24	26
$\Sigma_\parallel/\Sigma_\perp$ théorique	8,2	8,0	7,7	7,4	7,0	6,7	6,3	5,9
$\Sigma_\parallel/\Sigma_\perp$ expérimental	6,9	6,0	6,8	6,9	6,9	6,8	9,2	8,3

TABLE 2.1 – Comparaison des rapports théoriques et expérimentaux de $\Sigma_\parallel/\Sigma_\perp$ pour différents angles de croisement des ondes pompe θ (θ donné dans l'air).

Nous constatons que le ratio $\Sigma_\parallel/\Sigma_\perp$ expérimental ne correspond pas au ratio théorique : nous mesurons un rapport globalement constant de 7,2±2,0, représenté sur la figure 2.10 par une ligne pointillée et une plage grisée. Pour les plus forts angles les résultats expérimentaux suivent une tendance inverse à celle proposée par le modèle théorique, en aboutissant à un ratio proche de 8-9.

Il existe donc entre les résultats expérimentaux et notre modèle théorique un écart significatif qui, bien que nous continuions à étudier cet effet, n'a pas encore trouvé d'explication physique à l'heure de l'écriture de ces lignes. Nos principales présomptions portent sur

l'opération de normalisation qui nécessite une soustraction du fond continu : le rapport de deux fonctions varie lorsqu'on ajoute/soustrait une constante à ces deux fonctions. Dans notre cas, cette constante provient de résidus de l'ordre 0 de diffraction (reflets, diffusion...) lesquels sont plus forts pour les angles faibles en raison de la plus faible séparation spatiale des ordres de diffraction sur la caméra : l'ordre 0 est moins bien filtré à 12° qu'à 26°.

2.4/ SYNCHRONISATION POMPE-SONDE

2.4.1/ OBTENTION D'UN CRITÈRE OBJECTIF POUR $\tau = 0$

La mesure du signal diffracté fournit de manière assez directe le délai $\tau = 0$ grâce la recherche du barycentre de $\Sigma(\tau)$. L'estimation barycentrique autorise à réduire la barre d'erreur sur $\tau = 0$, liée au pas entre deux points de mesure (ici $\pm$3 fs).

La mesure de τ_0 doit s'effectuer pour une configuration donnée, incluant la position relative du réseau par rapport à l'échantillon. En effet, lorsqu'on change la position du réseau dans l'échantillon selon l'axe z, la valeur de τ_0 varie du fait de la différence de vitesse de groupe dans l'échantillon : les indices de groupe vus par les deux longueurs d'onde λ_p et λ_s ne sont pas égaux. Ceci a pour conséquence de modifier le temps de parcours pour chaque longueur d'onde sur la distance entre la face d'entrée du milieu et le plan effectif du réseau dans lequel se produit la diffraction.

Considérons que le réseau est positionné à une certaine profondeur dans l'échantillon z_0 et que nous connaissons la position de $\tau = 0$, prise pour référence. On déplace maintenant l'échantillon physiquement d'une distance δ selon l'axe z. Par les lois de la réfraction, le réseau d'indice se déplace alors dans l'échantillon selon z de :

$$\Delta = \Big(n(\lambda_p) - 1\Big)\,\delta \tag{2.12}$$

La différence de vitesse de groupe sur la variation de distance δ engendre une retard $\Delta\tau$, dépendant à la fois de δ et aussi de l'angle θ du faisceau pompe : un angle θ grand est associé à une faible projection sur l'axe de propagation, sur lequel se propage l'onde sonde. Conséquence, le retard induit par un déplacement de l'échantillon sur une distance δ s'exprime par :

$$\Delta\tau(\delta) = \frac{\delta}{c}\left(\frac{1}{\cos\theta_{air}} - 1 + n(\lambda_p)\left(n_g^{400} - \frac{n_g^{800}}{\cos\theta_{verre}}\right)\right) \tag{2.13}$$

Dans le cas des faibles angles θ, cette expression se simplifie sous la forme :

$$\Delta\tau(\delta) = \frac{\delta}{c}\Big(n(\lambda_p)\Big(n_g^{400} - n_g^{800}\Big)\Big) \tag{2.14}$$

Dans le cas d'une propagation dans le saphir où n_g^{400} = 1,7960 et n_g^{800} = 1,7500 [194], pour un indice $n(\lambda_p)$ = 1,7601, nous obtenons un retard de 0,267 fs par micron de déplacement δ.

La figure 2.11 montre le décalage en délai τ du barycentre du signal diffracté pour différentes positions de l'échantillon (saphir) le long de l'axe z. La superposition des points

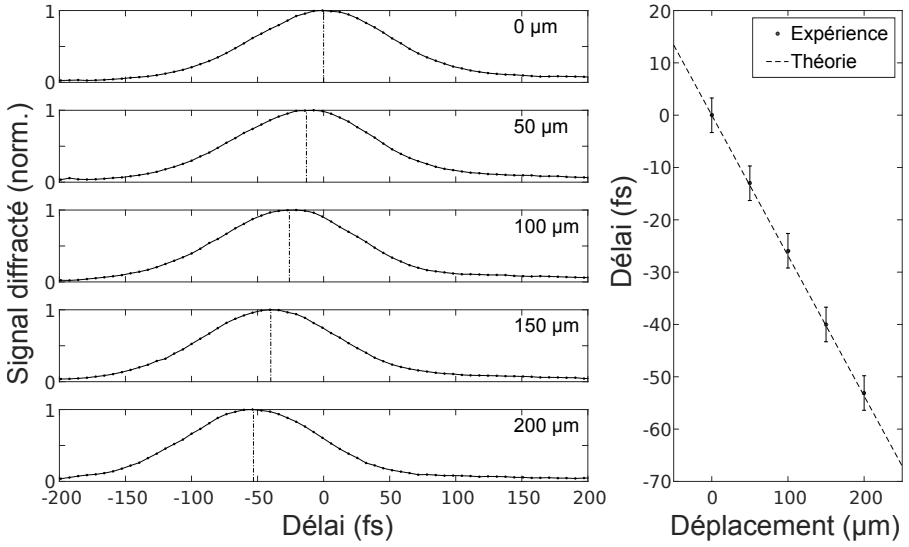

FIGURE 2.11 – Étude de la synchronisation pompe-sonde pour différentes positions en profondeur du réseau d'indice dans un échantillon de saphir. À gauche, les courbes $\Sigma(\tau)$ pour 5 positions de l'échantillon différentes. À droite, l'évolution de $\tau = 0$ pour chaque position, comparée avec la droite théorique $\Delta\tau(\delta)$ donnée en équation (2.14).

expérimentaux et de la courbe théorique donnée par l'équation (2.14) nous confirme la validité de notre modèle.

L'inscription d'un réseau d'indice transitoire par effet Kerr permet de déterminer le délai $\tau = 0$ correspondant à la synchronisation des impulsions pompe et sonde pour une position donnée, mais aussi d'anticiper précisément sa variation lorsqu'on déplace l'échantillon.

2.4.2/ SENSIBILITÉ DE LA TECHNIQUE À LA QUALITÉ DES OPTIQUES

Lors des premières expériences de diffraction sur le réseau d'indice, un comportement inattendu a été observé : le délai $\tau = 0$ du signal sonde diffracté se trouvait décalé d'une centaine de femtosecondes entre deux états de polarisation différents de l'impulsion pompe. La mesure est effectuée pour deux milieux différents (silice fondue et saphir), à différentes profondeurs et plusieurs énergies : le décalage temporel entre les polarisations reste présent et de l'ordre de 130 fs. Cet effet existe pour les deux états de polarisation de la sonde et quelque soit l'orientation des lignes du réseau (axe x ou y) : seul un changement d'orientation de la polarisation de la pompe décale la position du délai $\tau = 0$ (figure 2.12).

Bien qu'il existe une réponse différente en efficacité selon l'état de polarisation de l'onde optique à l'origine de la variation d'indice (section 2.3.2), aucun effet retardé n'est compatible avec l'effet Kerr du fait de la réponse quasi-instantanée du milieu [184].

L'origine de cet effet de retard est un biais expérimental provenant du miroir dichroïque assurant la recombinaison et la superposition des ondes pompe et sonde (voir figure 2.5). Ce dernier est donné par le fabricant comme réfléchissant pour $\lambda > 650$ nm, quelque soit l'état de polarisation. Pour tester ses spécifications, nous le remplaçons par un autre modèle de miroir dichroïque provenant d'un autre fabricant. Après ce remplacement, le

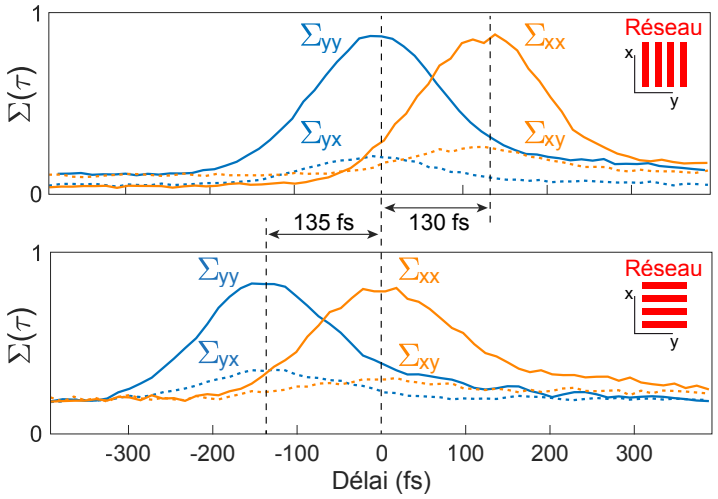

FIGURE 2.12 – Mise en évidence d'un décalage de ≈130 fs sur le délai $\tau = 0$ pour deux états de polarisation de la pompe, pour un réseau induit dans la silice fondue. Ni l'orientation du réseau ni l'état de polarisation de la sonde n'influent sur ce décalage.

délai entre les états de polarisation de la pompe est devenu inférieur à la sensibilité de notre mesure (précision : environ 5 fs), prouvant ainsi le comportement indésirable du miroir originel. Le lecteur notera que toutes les mesures présentées hors de cette partie sont réalisées avec le second modèle de miroir.

Nous suspectons que le traitement de surface (*coating*) composé parfois de plusieurs dizaines de couches engendre une réflexion à deux profondeurs différentes suivant la polarisation incidente. Le délai de 130 fs est compatible avec des réflexions sur deux couches différentes séparées de 7 µm (en incidence à 45°) si l'on considère que le traitement possède un indice moyen proche de 2. Dans cette hypothèse, et tenant compte des épaisseurs de l'ordre de $\lambda/4$ des couches du traitement [195], ceci correspondrait alors à une réflexion en surface du traitement pour un des états de polarisation, et à l'interface traitement-substrat pour le second.

Quoiqu'il en soit réellement au niveau du miroir dichroïque incriminé, notre méthode permet de mettre en évidence un biais expérimental lié à un défaut sur le traitement de surface d'une optique. Sans correction de ce défaut, nous aurions pu parvenir à de fausses interprétations de l'expérience pompe-sonde sur un éventuel effet retardé dépendant de la polarisation si nous nous étions contentés de mesurer le délai $\tau = 0$ pour une seule polarisation de l'onde pompe. Nous montrons ici l'importance de réaliser la mesure de synchronisation dans les mêmes conditions que pour la mesure pompe-sonde, permettant ainsi de tenir compte d'autres biais expérimentaux éventuels.

2.5/ OPTIMISATION DE LA COMPRESSION DE L'IMPULSION SONDE

2.5.1/ PRINCIPE DE LA MESURE

L'utilisation de la méthode du réseau transitoire à effet Kerr permet plus que la détermination simple du délai correspondant à la synchronisation : l'intercorrélation $\Sigma(\tau)$

nous renvoie des informations également sur les profils temporels $I_p(t)$ et $I_s(t)$. On peut donc, en conservant un profil I_p constant, optimiser le profil temporel de I_s, notamment en ce qui concerne la compression de l'impulsion au sein de l'échantillon.

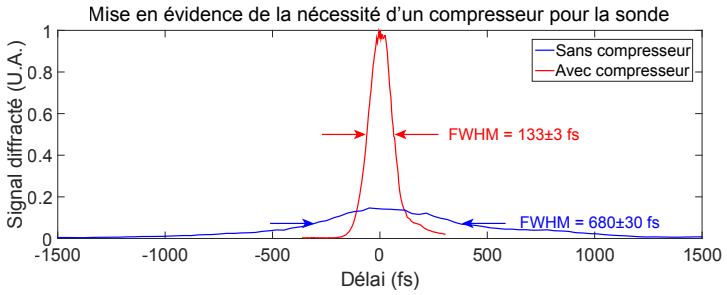

FIGURE 2.13 – L'ajout d'un compresseur permet d'améliorer considérablement la résolution de l'expérience pompe-sonde : la courbe d'intercorrélation voit sa largeur diminuée d'un facteur 5 grâce à la compression de l'impulsion sonde.

Le bénéfice apporté par une compensation de la dispersion est très clair en observant la figure 2.13 où sont tracées les courbes d'intercorrélation $\Sigma(\tau)$ en l'absence et avec l'ajout d'un compresseur à prisme, pour un signal pompe identique. Une trace d'intercorrélation étroite correspond à une résolution temporelle haute pour l'expérience pompe-sonde : l'ajout d'un compresseur permet d'améliorer les performances de notre expérience.

L'optimum de compression de la pompe est obtenu en plaçant temporairement un cristal de BBO (β-borate de baryum), qui permet de réaliser un doublage de fréquence dans le plan de l'échantillon. En ajustant la position des réseaux du compresseur commun à la pompe et à la sonde, on trouve un maximum dans le signal doublé qui témoigne de l'accession aux plus hautes puissances crêtes, correspondant à l'impulsion pompe la plus courte. Il est à noter que le changement de dispersion induit par le déplacement des réseaux dans le compresseur ne change pas le spectre du l'impulsion sonde obtenue par doublage de fréquence : seule l'efficacité de conversion vers la seconde harmonique est affectée [196].

Dans la configuration dans laquelle l'impulsion pompe est comprimée au sein de l'échantillon, nous remontons à la durée d'impulsion sonde par le signal d'intercorrelation : en supposant que la pompe est réellement comprimée au niveau de l'échantillon, on se place dans le cas le plus pessimiste pour l'estimation de la durée d'impulsion sonde.

L'optimisation de la compression se fait en mesurant le signal $\Sigma(\tau)$ pour une compensation de dispersion variable du faisceau sonde (différentes distances d_p d'insertion des prismes du compresseur) et en trouvant la position pour laquelle la largeur temporelle de $\Sigma(\tau)$ est minimale.

2.5.2/ OPTIMISATION ET DURÉE DE L'IMPULSION SONDE

Nous mesurons le signal d'intercorrelation $\Sigma(\tau) \propto \int I_p^2(t) I_s(t-\tau) \mathrm{dt}$ pour différentes positions d_p d'insertion des prismes dans le faisceau sonde. Cette opération change implicitement le délai τ = 0 pour chaque cas, du fait de la variation d'épaisseur de verre traversée dans le compresseur. Par soucis de clarté et pour simplifier les comparaisons, toutes les courbes présentées par la suite seront centrées autour de leur τ = 0 propre.

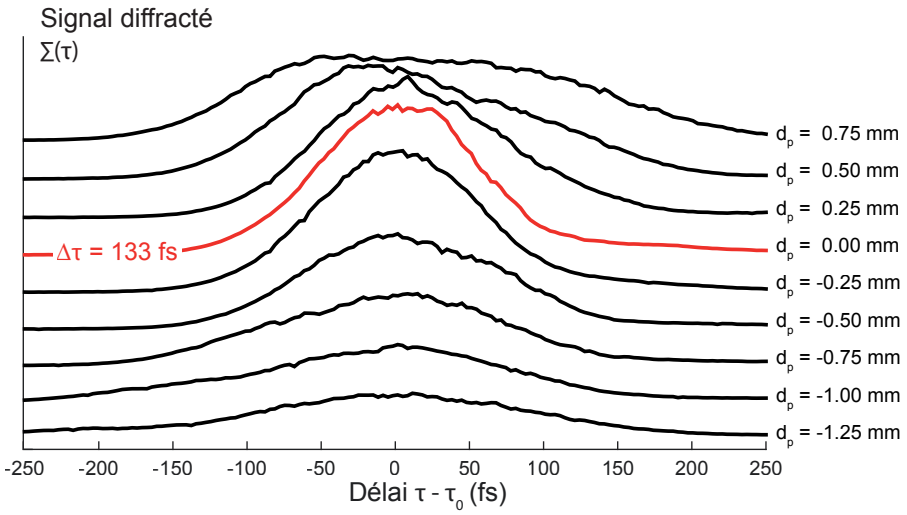

FIGURE 2.14 – Signal diffracté pour différentes distances d'insertions des prismes dans le compresseur. L'optimum obtenu possède une largeur à mi-hauteur de 133 fs. On choisit arbitrairement cette position des prismes comme référence d_p = 0 mm.

Les courbes présentées en figure 2.14 montrent une variation du profil temporel de $\Sigma(\tau)$ et particulièrement de sa largeur temporelle. Un minimum de largeur temporelle est observé (en rouge) et présente une largeur à mi-hauteur de 130±3 fs.

Supposant que l'impulsion pompe au sein de l'échantillon est gaussienne et compressée (durée à mi-hauteur de τ_p 110 fs), on peut alors trouver la durée d'impulsion sonde qui conduit à ce que l'intercorrelation $\Sigma(\tau)$ donnée par l'équation (2.10) possède la même largeur à mi-hauteur que le profil mesuré expérimentalement (au plus court : 128±3 fs). Ceci nous conduit à une estimation d'une durée d'impulsion sonde à 100±5 fs, qui est compatible avec le fait que cette dernière est générée par doublage de fréquence de l'impulsion pompe, dont la durée est semblable.

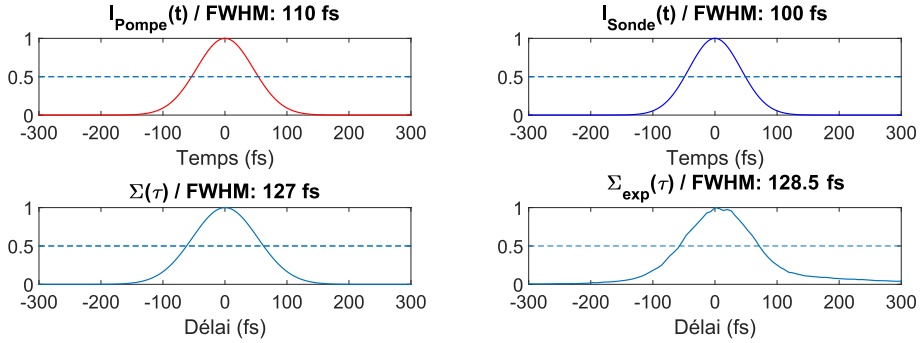

FIGURE 2.15 – Intercorrelation numérique sur la base de deux gaussiennes, représentant les impulsions pompe et sonde. Supposant le profil de $I_p(t)$ on retrouve le profil $I_s(t)$ conduisant à $\Sigma(\tau)$ le plus proche de celui mesurée expérimentalement $\Sigma_{exp}(\tau)$.

La présence du compresseur améliore drastiquement les performances de l'expérience pompe-sonde : en l'absence de compresseur, une mesure au niveau de l'échantillon nous donne une durée d'impulsion sonde de plus de 1 ps. L'ajout et l'optimisation du compresseur représentent une amélioration de la résolution temporelle théorique d'un facteur 10.

2.6/ CARACTÉRISATION SPATIO-TEMPORELLE DE L'IMPULSION SONDE

Grâce à l'utilisation d'une caméra pour l'imagerie dans le plan de Fourier, nous pouvons exploiter la dimension spatiale de notre mesure et observer le lieu de focalisation du spot diffracté sur la caméra. Il s'avère que sous certaines conditions, le spot se déplace latéralement en fonction du délai τ (figure 2.16) sans pour autant que l'alignement soit en cause (l'ordre 0 de diffraction reste fixe).

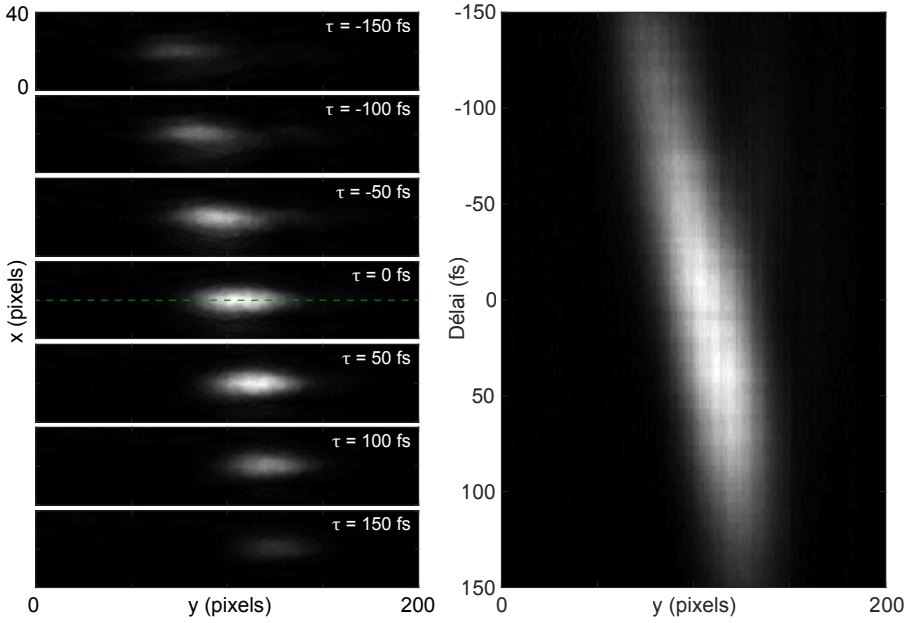

FIGURE 2.16 – Signal diffracté mesuré par la caméra pour différents délais, au niveau de la région d'intérêt (ROI). Le spot se déplace selon l'axe y en fonction du délai lorsque l'alignement du compresseur à prismes n'est pas optimal. La ligne pointillée verte correspond à la ligne sur laquelle on extraira le profil d'intensité par la suite.

Une manière de comprendre ce phénomène est de considérer qu'il existe alors un délai $\tau = 0$ différent pour chaque fréquence spatiale présente dans le faisceau. En d'autres termes, nous observons ici des effets spatio-temporels tels que l'inclinaison de front d'onde (*Pulse Front Tilt*, PFT) ou de dispersion angulaire chromatique (*chirp* angulaire).

Ceux-ci existent lorsque des éléments dispersifs sont présents dans le chemin optique, et particulièrement dans le cas des compresseurs : un compresseur mal aligné est source de termes de dispersion d'ordres supérieurs entrainant des distorsions spatio-temporelles de l'impulsion [197–200].

La figure 2.17 présente un panel de distorsions spatiotemporelles existantes dans les compresseurs à prismes. Dans le cas des dioptres plans et pour un milieu dispersif traversé par une impulsion laser, seuls des effets temporels sont constatés (a) par la différence de vitesse de groupe dans le milieu. Dès lors que l'incidence n'est plus normale, la dispersion provoque des effets spatiaux. Pour une lame à faces parallèles inclinée (b), on observe une distribution du spectre de l'impulsion le long du front d'onde, sous forme de *chirp* spatial (dispersion spatiale) mais sans inclinaison de front d'onde.

Dans le cas d'un prisme le même phénomène se produit (c), et une dispersion angu-

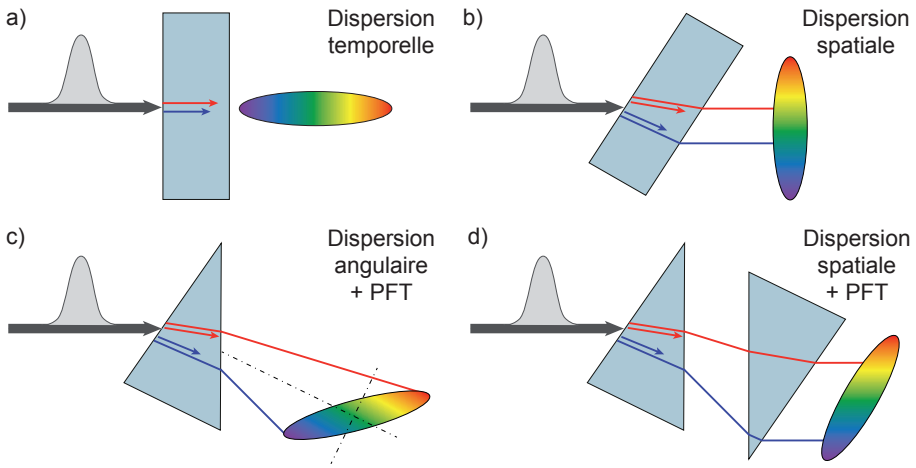

FIGURE 2.17 – Effets spatiotemporels induits par la dispersion dans différentes configuration : a) lame à face parallèle en incidence normale (dispersion temporelle), b) idem en incidence oblique (chirp spatial), c) cas d'un prisme (dispersion angulaire et pulse front tilt) et d) de deux prismes parallèles (chirp spatial et pulse front tilt).

laire s'ajoute du fait du non-parallélisme des faces. La dispersion angulaire implique la présence d'une inclinaison de front d'onde, d'après les propriétés de la transformée de Fourier [201]. Pour une paire de prismes parallèles (d), la dispersion angulaire est compensée (conduisant à une simple dispersion spatiale) mais pas l'inclinaison de front d'onde du fait de l'espace entre les prismes.

En théorie, la présence d'une seconde paire de prismes (ou d'un miroir de repliement) compense par les mêmes quantités la dispersion spatiale et l'inclinaison de front d'onde. En pratique, il n'est pas rare que le parallélisme des prismes soit imparfait et induise de la dispersion angulaire et par conséquent une inclinaison de front d'onde.

Dans notre système, la présence d'un télescope réduisant le diamètre du faisceau d'un facteur $\times$ 278 implique également une multiplication des angles par ce même facteur : toute dispersion angulaire induite par le compresseur se voit considérablement augmentée. Une simulation sous Zemax^{TM} nous permet de calculer fréquence par fréquence le parcours dans un modèle de notre compresseur, dans lequel nous induisons des imperfections. Par exemple, lorsqu'on désaligne un des prismes de 1 mrad, nous obtenons une dispersion angulaire de 38 mrad par nanomètre de spectre au niveau du compressor. Ceci conduit au niveau de notre échantillon à un angle de 0,19°/nm, soit 1,33° sur l'ensemble des 7 nm de spectre de notre impulsion sonde.

La présence de dispersion angulaire permet d'expliquer que chaque fréquence conduise à une focalisation à un point différent de la caméra (si on intègre sur τ, on observe un élargissement du spot). Le pulse front tilt associé explique que le délai $\tau = 0$ soit différent pour chacune de ces fréquences : le barycentre du spot se déplace alors sur la caméra en fonction du délai τ. Une vue schématique de ces effets est visible en figure 2.18, montrant le résultat obtenu sur la caméra pour trois contributions (rouge, vert, violet) n'ayant pas le même angle d'incidence et pour un front d'onde incliné.

Nous mesurons alors le profil de déviation du spot sur la caméra en fonction du délai τ pour différents angles du second prisme de notre compresseur. La mesure de la rotation imprimée au prisme est faite en observant sur un écran placé à plusieurs mètres le déplacement d'un faisceau laser (pointeur à 632 nm) réfléchi par l'un des faces du

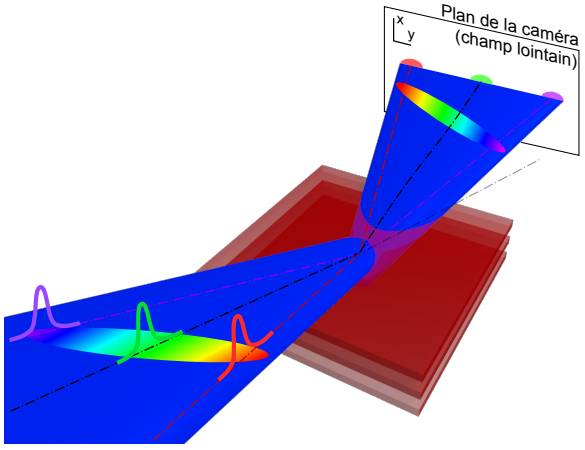

FIGURE 2.18 – Illustration du déplacement du spot diffracté sur la caméra pour un faisceau sonde présentant un pulse front tilt associé à un chirp angulaire.

prisme. La résolution de mesure sur la rotation du prisme est estimée à 300 µrad.

Sur la figure 2.19 on peut voir les profils de déviation en fonction de l'angle du second prisme. La région intense possède une inclinaison qui varie avec l'angle de rotation du prisme et qui témoigne des distorsions spatio-temporelles. Une forte inclinaison signifie un grand délai entre les composantes spectrales : nous obtenons ici une mesure indirecte de l'inclinaison du front d'onde.

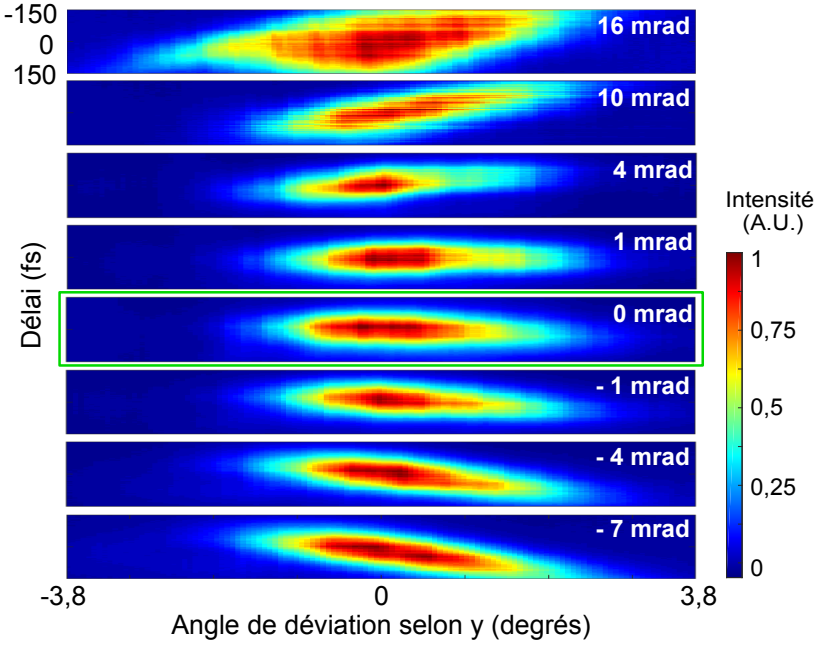

FIGURE 2.19 – Évolution du profil d'intensité selon la ligne pointillée montrée en figure 2.16 en fonction du délai et pour différents angles de désalignement des prismes (en gras). Le déplacement du spot sur l'axe y est converti en angle au niveau de l'échantillon. Le signal correspondant à un compresseur correctement aligné (désalignement : 0 mrad) est encadré en vert.

Le cas idéal ne présente aucune déformation spatiotemporelle et correspond à un incli-

naison nulle sur la figure 2.19 : toutes les composantes spectrales sont temporellement coïncidentes. Les angles du prisme (en gras) sont ici donnés en référence depuis la position 0 mrad pour laquelle plus aucune inclinaison n'est observée (encadrée de vert).

Dans cette configuration, le spot ne présente plus de déviation en fonction du délai : nous avons corrigé les effets spatiotemporels dans la limite de détection de notre mesure.

2.7/ CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Nous avons présenté dans ce chapitre une technique exploitée à l'origine comme un simple moyen de remonter à la synchronisation d'une expérience pompe-sonde hétérodyne. En utilisant l'effet Kerr pour convertir le profil temporel de l'impulsion pompe en modification d'indice transitoire, nous parvenons à faire diffracter l'impulsion sonde sur un motif de réseau obtenu par mise en forme spatiale de la pompe.

La mesure du signal diffracté permet de remonter au délai $\tau = 0$ pour lequel pompe et sonde sont coïncidentes temporellement. Nous montrons que cette méthode permet une détermination de $\tau = 0$ quelle que soit la position de mesure en profondeur de l'échantillon, tenant ainsi compte de la différence de vitesse de groupe.

Comparativement aux autres méthodes permettant de caractériser le délai $\tau = 0$, notre méthode possède l'avantage significative de pouvoir directement faire la mesure dans l'échantillon sur lequel porte la mesure pompe-sonde : l'accord de phase est automatiquement vérifié pour l'effet Kerr quel que soit le milieu, et l'efficacité de diffraction nous permet de travailler dans des milieux fins (< 100 µm).

La diffraction sur un réseau Kerr n'impose pas de condition sur l'onde sonde : la mesure fonctionne pour tous les états de polarisation, pour un spectre large (supercontinuum), pour une impulsion non-compressée et présentant des distorsions spatiotemporelles.

Mieux encore, cette technique permet également d'optimiser la compensation de dispersion du système grâce à un compresseur dédié, en estimant *in situ* la durée d'impulsion sonde. Grâce à l'utilisation d'une caméra, nous sommes sensibles aussi aux distorsions spatio-temporelles induites par un compresseur mal aligné. Nous parvenons ici à une réduction sous le seuil de détection d'un effet de dispersion angulaire lié à des prismes non-parallèles dans notre compresseur.

L'expression de l'intensité diffractée prend la forme d'une convolution des enveloppes temporelles des impulsions pompe et sonde. Cette expression est identique à celle d'une mesure X-FROG, dans laquelle une mesure de la phase spectrale est possible.

Dans notre expérience, il suffirait alors de remplacer la caméra mesurant l'intensité de l'ordre de diffraction par un spectromètre donnant accès au spectre diffracté. Un algorithme FROG nous permettrait alors de restituer la phase spectrale relative de l'impulsion sonde, sous réserve de connaître celle de l'onde pompe (qu'il est possible de mesure par auto-diffraction [172, 179]).

3

ÉTUDE DU PLASMA GÉNÉRÉ PAR IMPULSIONS ULTRA-BRÈVES

Ce chapitre concerne l'expérience principale de ce travail de thèse. Nous réalisons une expérience d'imagerie pompe-sonde permettant d'interroger l'état d'un milieu transparent lors d'un processus d'ablation par une impulsion laser femtoseconde mise en forme de faisceau de Bessel. Nous nous intéressons principalement à deux grandeurs concernant le plasma créé : sa densité et son étendue spatiale (son diamètre notamment).

L'expérience pompe-sonde comporte un interféromètre sur sa partie sonde, de manière à encoder à la fois l'information d'amplitude mais aussi de phase et à la restituer sous la forme d'une distribution d'indice de réfraction complexe qui témoigne des propriétés du plasma. Après avoir présenté le principe de la mesure et discuté de la stabilité de l'expérience, nous proposons une méthode de démodulation des images interférométriques et d'extraction d'indice. Nous montrons qu'il est possible de résoudre temporellement la dynamique du dépôt d'énergie par laser femtoseconde et sa relaxation sur des échelles allant de < 100 fs à 5 ns et d'extraire l'information portant sur la variation d'indice de réfraction induite par une impulsion laser mise en forme de faisceau de Bessel.

L'imagerie haute résolution utilisée dans cette expérience permet alors de mesurer le diamètre du plasma généré. L'observation de la dynamique sur une large gamme temporelle nous permet d'explorer également le régime de relaxation de l'énergie déposée et de mesurer la célérité de propagation d'ondes de choc.

Au jour d'écriture de ce manuscrit, le bruit présent limite cependant encore la mesure de la densité locale du plasma à une estimation d'ordre de grandeur. Les résultats sont toutefois très prometteurs et même si la restitution de l'indice de réfraction reste quantitativement imprécise, les comportements majeurs observés sont compatibles avec les phénomènes physiques attendus.

En fin de ce chapitre, nous réalisons deux expériences complémentaires permettant de statuer sur la présence d'un plasma dense potentiellement super-critique. La première se base sur une comparaison expérience-simulation de l'autoréflexion de l'impulsion excitatrice sur le plasma. Nous montrons alors que dans la silice fondue, la densité de plasma maximale atteinte est de l'ordre de la densité critique pour une impulsion microjoule mise en forme de faisceau de Bessel, bien que cette énergie soit typiquement à la moitié du seuil de formation des nanocanaux.

La seconde expérience apporte la première preuve expérimentale de génération de seconde harmonique par interaction laser-plasma dans le volume. La caractérisation de ce signal de seconde harmonique offre alors une nouvelle opportunité pour la compréhension de l'interaction laser-plasma et particulièrement au niveau de la surface du plasma.

3.1/ IMAGERIE POMPE-SONDE INTERFÉROMÉTRIQUE

3.1.1/ MESURE INDIRECTE DE LA DENSITÉ DU PLASMA : PRINCIPE

De manière directe, nous ne pouvons mesurer ni la densité ni le profil spatial du plasma généré par une impulsion femtoseconde au sein d'un milieu. En revanche nous pouvons accéder aux grandeurs physiques dépendantes des propriétés du plasma : nous choisissons d'observer la perturbation induite par un plasma formé par une impulsion pompe sur la propagation d'une impulsion sonde dans un milieu originellement homogène. Cette perturbation se traduit par une variation de l'indice de réfraction, dont l'amplitude, la distribution et l'évolution temporelle seront notre principales grandeurs d'intérêt. Quant à l'impulsion sonde, elle provient d'une réplique de l'impulsion pompe, doublée en fréquence par génération de seconde harmonique : l'impulsion sonde possède une durée d'impulsion minimale de 70 fs à 400 nm.

3.1.1.1/ ÉQUATION DE PROPAGATION EN MILIEU INHOMOGÈNE

Nous cherchons alors à établir l'équation régissant la propagation d'un champ $\mathbf{E}$ lorsque le milieu est inhomogène du fait de la présence d'une perturbation liée au plasma.

Afin de simplifier le modèle (tout en le gardant suffisamment réaliste), nous formulons plusieurs approximations :

- le milieu de propagation est non-magnétique : $\mu_r = 1$
- la densité locale de charge est nulle : $\rho = n_- + n_+ = 0$
- par conséquent, le vecteur courant associé est nul : $\mathbf{J} = 0$

Nous résolvons alors les équations de Maxwell dans un milieu purement diélectrique [202] :

$$\begin{aligned} \nabla \times \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, \quad \nabla \cdot \mathbf{B} = 0, \\ \nabla \times \mathbf{H} &= \mu_0 \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t}, \quad \nabla \cdot \mathbf{D} = 0. \end{aligned} \tag{3.1}$$

L'interaction avec le milieu est contenue dans $\mathbf{D}$, par le biais de la polarisation $\mathbf{P}$ qu'on considère comme locale : la réponse d'un point du milieu n'est pas dépendante d'un autre point. L'impulsion sonde est choisie avec une faible énergie, afin de ne pas perturber l'état du système lors de la propagation de celle-ci : nous faisons alors ici l'hypothèse d'une propagation linéaire et nous négligeons les termes non-linéaires de $\mathbf{P}$.

Nous supposerons également par la suite un modèle purement monochromatique pour l'impulsion sonde, en négligeant l'effet des variations d'indices sur la faible largeur de

bande (7 nm) de la sonde. Nous nous plaçons par la suite dans le cas d'une onde à la pulsation centrale ω_s :

$$\mathbf{E} = \mathbf{E_0}(\mathbf{r})e^{-i\omega_s t}, \qquad \mathbf{B} = \mathbf{B_0}(\mathbf{r})e^{-i\omega_s t} \tag{3.2}$$

3.1.1.2/ CONTRIBUTION DU PLASMA

Dans notre modèle nous considérons que l'impulsion pompe crée un plasma de densité $\rho_e(\mathbf{r})$ dans un milieu homogène. Nous faisons l'hypothèse forte que l'impulsion sonde n'interagit pas avec ce plasma et ne "voit" cette contribution que comme une inhomogénéité du milieu, contenue dans la distribution spatiale de permittivité $\varepsilon(\mathbf{r}, \omega_s)$.

La réponse linéaire du milieu est considérée comme isotrope, le tenseur de permittivité $\overline{\chi}(\mathbf{r}, \omega_s)$ prend une forme scalaire et on introduit la permittivité relative du milieu : $\varepsilon_r(\mathbf{r}, \omega_s) = 1 + \chi(\mathbf{r}, \omega_s)$, qui devient alors la quantité témoin de la réponse du plasma.

Un modèle simplifié comme le modèle de Drude associe à la densité électronique $\rho_e(\mathbf{r})$ générée par l'impulsion pompe une permittivité diélectrique relative complexe $\varepsilon_r(\omega, \mathbf{r})$ [36], témoignant de la réponse du milieu perturbé par le plasma lors de la propagation d'une onde de pulsation ω. Cette permittivité s'écrit dans un milieu de permittivité originelle ε_i [203] :

$$\varepsilon_r(\omega, \mathbf{r}) = \varepsilon_i - \frac{\omega_p^2(\mathbf{r})}{\omega^2 + i\gamma\omega} \tag{3.3}$$

où $\omega_p^2 = \rho_e(\mathbf{r})e^2/(m_e\varepsilon_0)$ est la pulsation plasma contenant l'information sur la densité électronique locale $\rho_e(\mathbf{r})$ (électrons de masse m_e et de charge e) et ε_i est la permittivité relative originelle du milieu diélectrique. Le terme $\gamma = 1/\tau_c$ introduit une fréquence de collisions entre électrons au sein du plasma, contribuant à l'équilibre thermodynamique local.

Nous faisons l'hypothèse que la variation de permittivité ε_r est négligeable sur la durée d'impulsion sonde (hypothèse stationnaire $\frac{\partial \varepsilon_r}{\partial t} = 0$) [1]. En injectant les relations constitutives du milieu $\mathbf{D} = \varepsilon_0\varepsilon_r\mathbf{E}$ et $\mathbf{B} = \mu_0\mathbf{H}$, les équations de Maxwell deviennent :

$$\begin{aligned} \nabla \times \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}, & \nabla \cdot \mathbf{B} &= 0, \\ \nabla \times \mathbf{B} &= \frac{\varepsilon_r(\mathbf{r})}{c^2}\frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t}, & \nabla \cdot \mathbf{E} &= \frac{-\nabla\varepsilon_r(\mathbf{r})}{\varepsilon_r(\mathbf{r})} \cdot \mathbf{E}. \end{aligned} \tag{3.4}$$

En prenant le rotationnel de $\nabla \times \mathbf{E}$, nous aboutissons à l'équation :

$$\begin{aligned} \nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) &\equiv \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}) - \Delta\mathbf{E}, \\ \nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) &= -\nabla\left(\frac{\nabla\varepsilon_r}{\varepsilon_r} \cdot \mathbf{E}\right) - \Delta\mathbf{E}, \\ \nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) &= \frac{\varepsilon_r(\omega_s)}{c^2}\frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2}; \end{aligned} \tag{3.5}$$

1. Cette hypothèse revient à considérer qu'on intègre ε_r sur la durée d'impulsion sonde et qu'on accède à une valeur moyenne sur cet intervalle.

$$\Delta\mathbf{E} - \frac{\varepsilon_r(\omega_s)}{c^2}\frac{\partial^2\mathbf{E}}{\partial t^2} = \nabla\left(\frac{\nabla\varepsilon_r}{\varepsilon_r}\cdot\mathbf{E}\right). \tag{3.6}$$

Cette dernière forme correspond à l'équation de propagation d'une onde dans un milieu inhomogène.

3.1.1.3/ VERS UN MODÈLE SIMPLIFIÉ

L'équation 3.6 ne possède pas de solution analytique simple : le lien entre la mesure de la propagation et la déduction de la valeur locale de ε_r n'est alors pas direct. La résolution de l'équation 3.6 implique une connaissance *a priori* sur le profil spatial de ε_r et nécessite une approche numérique complexe et coûteuse en temps de calcul.

Avant de se lancer frontalement dans la quête d'une solution qui s'annonce difficile à calculer, nous choisissons pour assurer la preuve de principe une méthode approchée pour laquelle la solution analytique est connue. Nous pouvons remarquer que l'effet de l'inhomogénéité concerne les deux termes contenant ε_r. Le premier terme présente une propagation linéaire dans un milieu d'indice de réfraction dépendant de l'espace. Le second témoigne du couplage du champ avec les gradients de charge : c'est ce terme qui prend en compte les effets de résonance sur le plasma par exemple.

Lorsque le second terme est petit et négligeable ($\nabla\varepsilon_r \to 0$) devant les autres membres, nous retrouvons une équation similaire à l'équation de Helmholtz homogène pour laquelle la solution est connue :

$$\Delta\mathbf{E} - \frac{\varepsilon_r(\omega_s,\mathbf{r})}{c^2}\frac{\partial^2\mathbf{E}}{\partial t^2} = 0 \tag{3.7}$$

En d'autres termes, sous réserve que $\nabla\varepsilon_r \to 0$, nous aboutissons après transformée de Fourier temporelle à une équation de Helmholtz faisant apparaître un lien direct sur la propagation de $\mathbf{E}$ avec le profil de permittivité $\varepsilon_r(\mathbf{r})$:

$$\Delta\mathbf{E} + k_0^2\varepsilon_r(\mathbf{r})\mathbf{E} = 0 \tag{3.8}$$

dans laquelle $k_0 = \omega_s/c$ est la norme du vecteur d'onde dans le vide. Si l'on néglige la dépendance en $\mathbf{r}$ de ε_r (cas homogène), on retrouve alors effectivement l'équation de Helmholtz pour un milieu homogène d'indice de réfraction n.

3.1.1.4/ APPROCHE PROPOSÉE : HELMHOLTZ SEMI-HOMOGÈNE

Dans l'ensemble de la suite de ce chapitre, nous nous restreindrons alors à ce cas simple, dans lequel le gradient de densité de charge du plasma $\nabla\rho$ est considéré comme négligeable. Cette approximation est loin d'être minime puisque des résultats préliminaires obtenus de manière numérique laissent à penser que pour une impulsion femtoseconde d'énergie microjoule, le plasma formé possède une densité assez forte et approche de la densité critique en son centre. Malgré cette réalité physique, la complexité du problème à résoudre nous oblige à restreindre nos ambitions à un problème simple dans un premier temps, pour raffiner le modèle dans la suite de ces travaux.

L'équation de propagation s'écrit comme une équation de Helmholtz où l'inhomogénéité du milieu est inclue dans le vecteur d'onde k lui-même. Nous écrivons cette équation

pour le cas d'une onde sonde polarisée linéairement et monochromatique, en utilisant son amplitude complexe $\mathcal{E}$:

$$\boxed{\Delta\mathcal{E} + k(\mathbf{r})^2\mathcal{E} = 0} \qquad \text{avec} \quad k^2 = k_0^2\varepsilon_r(\mathbf{r}). \tag{3.9}$$

$\varepsilon_r(\mathbf{r})$ contient à la fois les contributions homogènes et perturbées du milieu, correspondant à une propagation dans un milieu d'indice n défini comme la somme d'indices complexes respectifs n_0 et Δn. La permittivité $\varepsilon_r(\mathbf{r})$ est reliée à l'indice de réfraction complexe vu par une onde incidente par $n(\mathbf{r})^2 = \varepsilon_r(\mathbf{r})$: en connaissant l'amplitude complexe $\mathcal{E}$ de l'impulsion sonde en tous points de l'espace, nous pouvons alors théoriquement remonter indirectement à la densité électronique locale $\rho(\mathbf{r})$ lors de la propagation dans le milieu de l'impulsion (moyennée par la durée de l'impulsion sonde) :

$$\boxed{\rho(\omega, r) = \frac{m\varepsilon_0(\omega^2 + i\gamma\omega)}{e^2}\left(\varepsilon_i - n(r)^2\right)} \tag{3.10}$$

3.1.1.5/ Densité du plasma et propagation

L'existence de solutions propagatives de l'équation 3.9 est limitée au domaine de densité ρ sur lequel $\mathrm{Re}(\varepsilon_r) > 0$, correspondant au cas $\omega > \omega_p$ lorsque $\varepsilon_i = 1$. On définira la densité critique comme la densité du plasma pour laquelle la permittivité s'annule :

$$\rho_{cr}(\omega) = \frac{m_e\varepsilon_i\varepsilon_0}{e^2}\omega^2 \tag{3.11}$$

La densité critique est donc plus difficilement atteinte pour les milieux dont l'indice optique est fort (ε_i grand). Nous remarquerons ici la dépendance de la densité critique avec la fréquence de l'onde optique, ce qui signifie que lorsqu'un plasma atteint la densité critique pour une onde pompe à 800 nm, il reste sous-critique et par conséquence transparent à 400 nm :

$$\frac{\rho_{cr}(\omega_p)}{\rho_{cr}(\omega_s)} = \left(\frac{\omega_p}{\omega_s}\right)^2$$

3.1.1.6/ Un modèle aux limites connues

Comme nous l'avons souligné au moment d'approximer l'équation de propagation, notre approximation n'est particulièrement pas valide à proximité directe du plasma et dans les zones où les gradients de densité de charges sont les plus forts. Notre modèle est encore moins valide au cœur du plasma où la densité de charges atteint la densité critique pour l'onde décrite par l'équation de propagation : dans cette région, le terme $\frac{\nabla\varepsilon_r}{\varepsilon_r}$ devient même prépondérant et la propagation de l'onde sonde échappe à l'équation de propagation établie ici.

Cependant, la zone concernée reste très petite par rapport aux dimensions de l'onde sonde : celle-ci possède un profil spatial gaussien, dont la largeur à mi-hauteur est de l'ordre de la dizaine de micron. La grande majorité de la propagation de l'onde sonde respecte alors l'équation 3.9 car le diamètre du plasma attendu est typiquement de la taille du lobe central du faisceau de Bessel (< 1 µm).

De plus du fait de l'emploi d'une longueur d'onde λ_s plus faible pour l'impulsion sonde que pour l'impulsion pompe de longueur d'onde λ_p, lorsque la densité critique est atteinte pour λ_p, il reste une marge conséquente avant d'atteindre $\rho_{cr}(\lambda_s)$: seul un plasma fortement sur-critique à λ_p peut engendrer des solutions non-propagatives pour l'onde sonde.

Néanmoins, justement pour le cas extrême des plasmas les plus denses, l'information sur la distribution de plasma n'est pas accessible directement par le champ collecté à proximité du plasma. En prenant l'équation 3.9 comme support, les valeurs d'indice mesurées dans cette région seront probablement erronées. En revanche la diffraction subie par l'onde sonde porte elle aussi l'information sur la variation d'indice effectif à la longueur d'onde sonde. Grossièrement nous pouvons voir le plasma comme une distribution d'indice complexe sur lequel diffracte une onde sonde plane : les nouvelles fréquences spatiales apparaissant dans le terme k nous informent alors sur l'amplitude de la variation d'indice et des dimensions spatiales du profil d'indice. Une mesure dans l'espace direct sur des points situés à bonne distance du plasma du champ diffracté peut alors nous renseigner sur les variations d'indice dans la zone où notre modèle est localement invalide.

3.1.2/ RESTITUTION DE L'INDICE COMPLEXE LIÉ AU PLASMA

Supposant que l'équation d'Helmholtz semi-homogène utilisée dans ce chapitre restitue correctement la physique de propagation, il nous suffit alors de mesurer $\mathcal{E}(x,y,z)$ pour remonter à l'indice de réfraction vu par l'onde sonde. Cependant la mesure de l'amplitude complexe $\mathcal{E}$ à trois dimensions n'est pas une opération directe, et ce pour deux raisons principales.

Premièrement, les techniques d'imagerie conventionnelles ne permettent de mesurer que dans un plan, obligeant à échantillonner spatialement la distribution à trois dimensions par une succession de mesures plan à plan, dans la zone de formation du plasma. En imageant une succession de plans au sein du volume de l'échantillon, l'ensemble des modifications d'indice de réfraction située en aval de ces plans perturbent le champ effectivement collecté : nous n'avons alors pas accès à la véritable amplitude complexe $U(z)$ (figure 3.1.a).

La solution est trouvée en faisant croiser le plasma et la face de sortie. L'imagerie est réalisée en face de sortie de l'échantillon de manière à ne pas subir de distorsions liées à une propagation perturbée dans le milieu : toute propagation en aval de ce plan se fait dans l'air, sans distorsion liée à la non-linéarité de la réponse du milieu. Le passage d'un plan à l'autre se fait alors théoriquement en déplaçant conjointement l'échantillon et l'objectif de collection de l'intervalle Δz (figure 3.1.b).

Deuxièmement, les instruments de mesure utilisés en imagerie n'autorisent pas la mesure de l'amplitude complexe, mais portent seulement sur l'information d'amplitude (photodiodes, caméras...) ou de phase (analyseur de Shack-Hartmann...) de manière exclusive.

En imagerie, la détection par une caméra d'une onde optique ne permet d'accéder qu'au module carré (l'intensité) de l'onde : l'information de phase de l'amplitude complexe est perdue lors de la mesure. Appliquée à l'imagerie pompe-sonde, cette technique correspond à l'ombroscopie dans laquelle une mesure de la distribution d'absorption transitoire est possible mais n'est pas dissociable directement d'un gradient d'indice de réfraction

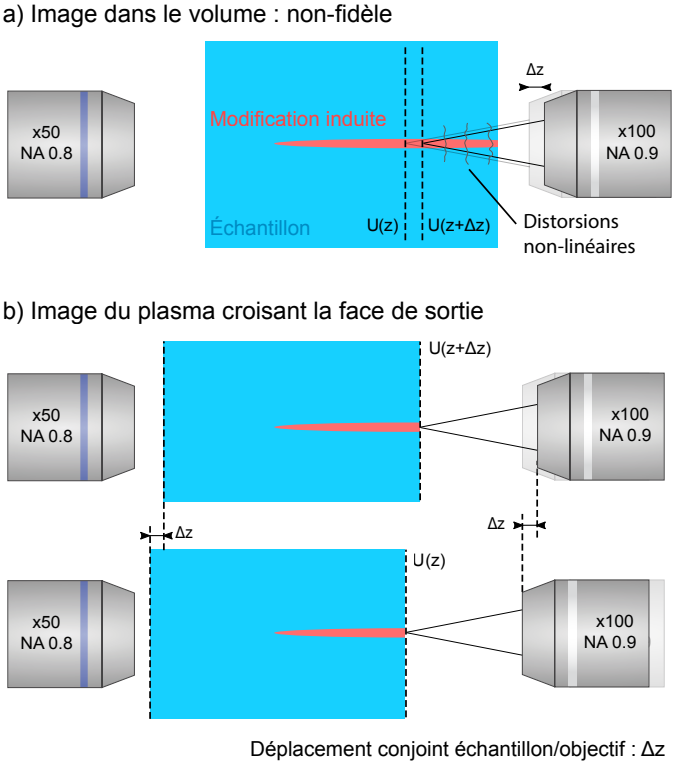

FIGURE 3.1 – Comparaison entre la méthode d'imagerie théorique (inaccessible) et celle utilisée en pratique. La première utilisant une imagerie dans le volume ne permet pas de retrouver fidèlement le champ sonde dans le plan d'imagerie ; la seconde utilise une imagerie en face de sortie, par déplacement conjoint de l'échantillon et de l'objectif entre deux images.

réel [127, 142, 145, 154, 164–166], à moins d'adjoindre à l'expérience un système de caractérisation supplémentaire, à l'aide de polariseurs par exemple [158, 204].

L'interférométrie permet d'encoder la phase sous la forme d'un motif d'intensité (un hologramme) détectable par la caméra [99]. Une onde de référence, réplique du faisceau sonde et ne passant pas dans l'échantillon, est alors nécessaire pour former l'hologramme. Une opération de démodulation est ensuite appliquée pour découpler les informations d'amplitude et de phase, et remonter par conséquent à l'amplitude complexe de l'onde sonde [152–154]. Nous effectuons cette opération numériquement, par une opération de filtrage dans l'espace des fréquences.

3.1.2.1/ AMPLITUDE COMPLEXE DE LA SONDE À PARTIR DE L'HOLOGRAMME

La figure d'interférence enregistrée par la caméra contient à la fois les contributions provenant de l'onde sonde et celles de l'onde de référence. Nous montrons la relation existant entre l'amplitude complexe de la sonde $\mathcal{E}_s$, de la référence $\mathcal{E}_r$ (toutes deux de longueur d'onde centrale λ_s) et l'intensité de la figure d'interférence mesurée par la caméra I. Grâce à ceci nous réalisons une démodulation de $\mathcal{E}_s$ à partir de I, permettant de séparer les effets liés aux parties réelles et imaginaires de l'indice du milieu vu par le faisceau sonde.

Expression de l'hologramme mesuré par la caméra L'onde de référence possède un angle θ_r par rapport à l'onde sonde selon l'axe horizontal y et porte donc une phase $e^{\frac{2i\pi}{\lambda_s}\theta_r y}$ dans l'approximation paraxiale (θ_r est de l'ordre de quelques degrés). L'onde sonde traverse quant à elle un milieu ajoutant un terme de phase φ, se décomposant en une partie réelle φ_r et une partie imaginaire φ_i.

On écrit alors l'expression de $\mathcal{E}_s$ et $\mathcal{E}_r$ au niveau du détecteur :

$$\mathcal{E}_s = \mathcal{E}_{s,0}.e^{i\varphi}, \qquad \mathcal{E}_r = \mathcal{E}_{r,0}.e^{\frac{2i\pi}{\lambda_s}\theta_r y} \tag{3.12}$$

où $\mathcal{E}_{r,s,0}$ sont les amplitudes des $\mathcal{E}_{r,s}$ dans le plan de sortie de l'échantillon.

Par interférence, le champ total $\mathcal{E}_{tot}$, somme de $\mathcal{E}_s$ et $\mathcal{E}_r$ s'écrit :

$$\mathcal{E}_{tot} = \mathcal{E}_s + \mathcal{E}_r = \mathcal{E}_{s,0}.e^{i\varphi_r}.e^{i\varphi_i} + \mathcal{E}_{r,0}.e^{\frac{2i\pi}{\lambda_s}\theta_r y}. \tag{3.13}$$

Le terme $e^{i\varphi_i}$ représente un facteur de transmission réel, transformant $\mathcal{E}_{s,0}$ en une amplitude $\mathcal{E'}_{s,0} = \mathcal{E}_{s,0}.e^{i\varphi_i}$. Sous cette convention, l'intensité détectée $I(x,y)$ par la caméra prend la forme suivante :

$$\begin{aligned} I(x,y) &= \mathcal{E}_{tot}\mathcal{E}^*_{tot}, \\ &= \left(\mathcal{E'}_{s,0}.e^{i\varphi_r} + \mathcal{E}_{r,0}.e^{\frac{2i\pi}{\lambda_s}\theta_r y}\right).\left(\mathcal{E'}_{s,0}.e^{i\varphi_r} + \mathcal{E}_{r,0}.e^{\frac{2i\pi}{\lambda_s}\theta_r y}\right)^*, \\ &= \mathcal{E'}^2_{0,s} + \mathcal{E}^2_{0,r} + \mathcal{E'}_{0,s}.\mathcal{E}_{0,r}.\left(e^{\frac{2i\pi}{\lambda_s}\theta_r y + \varphi_r} + e^{-\frac{2i\pi}{\lambda_s}\theta_r y - \varphi_r}\right), \\ &= I_0 + 2\mathcal{E'}_{0,s}.\mathcal{E}_{0,r}\cos\left(\frac{2\pi\theta_r y}{\lambda_s} + \varphi_r\right). \end{aligned} \tag{3.14}$$

Découplage phase/amplitude Après une transformée de Fourier spatiale à deux dimensions, il apparait que $I(x,y)$ possède des contributions centrées autour de trois fréquences spatiales propres : $\nu_y = 0$ et $\pm\theta_r/\lambda_s$.

$$TF[I(x,y)] = \tilde{I_0} + TF[\mathcal{E'}_{0,s}.\mathcal{E}_{0,r}.e^{\varphi_r}] * \delta\left(\nu_y - \frac{\theta_r}{\lambda_s}\right) + TF[\mathcal{E'}_{0,s}.\mathcal{E}_{0,r}.e^{\varphi_r}] * \delta\left(\nu_y + \frac{\theta_r}{\lambda_s}\right) \tag{3.15}$$

où $*$ représente l'opérateur de convolution.

Le terme autour de la fréquence spatiale nulle correspond au fond continu, contenant une contribution de la partie imaginaire n_i de l'indice de réfraction. Les deux termes centrés en $\nu_y \pm \theta_r/\lambda_s$ portent l'information complète sur n et sont redondants du fait de la relation de conjugaison entre les fréquences positives et négatives.

Une opération de filtrage spatial dans l'espace de Fourier permet de conserver uniquement un terme d'intérêt ($\nu_y = \theta_r/\lambda_s$) et le signal devient dans l'espace de Fourier et l'espace direct :

$$\begin{aligned} \widetilde{U_{filt}} &= TF[\mathcal{E'}_{0,s}.\mathcal{E}_{0,r}.e^{\varphi_r}] * \delta\left(\nu_y - \frac{\theta_r}{\lambda_s}\right), \\ U_{filt} &= \mathcal{E'}_{0,s}.\mathcal{E}_{0,r}.e^{\frac{2i\pi}{\lambda_s}(\theta_r y) - \varphi_r}. \end{aligned} \tag{3.16}$$

Il ne reste alors qu'à recentrer U_{filt} autour de la fréquence nulle en multipliant l'ensemble par une rampe de phase linéaire $e^{\frac{2i\pi}{\lambda_s}(\theta_r y)}$, pour obtenir l'expression finale du signal U_{demod} :

$$U_{demod}(x,y) = \mathcal{E}'_{0,s}.\mathcal{E}_{0,r}.e^{\varphi_r} = Ae^{i\Phi}. \tag{3.17}$$

Nous avons ainsi découplé les contributions réelles et imaginaires de l'indice vu par l'impulsion sonde : l'amplitude A porte l'information sur la partie imaginaire φ_i liée à l'absorption du milieu et la phase Φ contient le déphasage induit par l'indice réel φ_r :

$$A(x,y) = \mathcal{E}_{0,s}.\mathcal{E}_{0,r}.e^{\varphi_i(x,y)}, \qquad \Phi(x,y) = \varphi_r(x,y). \tag{3.18}$$

3.1.2.2/ ALGORITHME DE DÉMODULATION DE L'AMPLITUDE COMPLEXE

Partant de l'interférogramme mesuré par la caméra, nous remontons à l'amplitude complexe $\mathcal{E}_s$ par un code de démodulation numérique utilisant un couple d'images. L'algorithme de démodulation comprend 6 étapes principales, appliquant numériquement le processus analytique décrit un peu plus haut. La figure 3.2 présente l'allure du signal au cours des différentes transformation, partant des intensités I_{REF} et I_{DATA} jusqu'à arriver à $\mathcal{E}_s$ dans le plan de mesure.

Étape 1 : Enregistrement Pour chaque mesure de la modification d'indice induite par le plasma dans le milieu, nous effectuons systématiquement une mesure préalable sous la forme d'une image interférométrique réalisée en l'absence de modification induite (faisceau pompe bloqué par un obturateur mécanique : $\Delta n = 0$). L'image obtenue est appelée image de référence (notée I_{REF}), contenant l'information sur le produit $\mathcal{E}_{0,r}.\mathcal{E}_{0,s}$ et la phase spatiale liée à l'angle θ_r entre les deux ondes sonde et référence. Dans un second temps, nous enregistrons l'image issue du signal d'interférence incluant la perturbation induite par l'impulsion pompe. L'image portant l'information sur la modification d'indice est nommée I_{DATA}.

$$I_{REF} = I'_0 + 2\mathcal{E}_{0,s}.\mathcal{E}_{0,r}\cos\left(\frac{2\pi\theta_r y}{\lambda_s}\right), \qquad I_{DATA} = I_0 + 2\mathcal{E}'_{0,s}.\mathcal{E}_{0,r}\cos\left(\frac{2\pi\theta_r y}{\lambda_s} + \varphi_r)\right). \tag{3.19}$$

Étape 2 : Conservation des fréquences spatiales positives uniquement Nous éliminons les fréquences redondantes en ne gardant que les fréquences ν_y positives. Une telle opération se fait usuellement par un filtrage dans l'espace de Fourier [153, 154, 205], en mettant à zéro les composantes $\nu_y < 0$ et en perdant donc la moitié de l'information contenue dans l'image. Nous préférons alors la transformée de Hilbert, s'appliquant numériquement de la manière suivante dans le cas unidimensionnel :

$$\mathcal{H}[f(x)] = TF^{-1}\left[\tilde{f}(\nu_x) + \mathrm{sgn}(\nu_x)\tilde{f}(\nu_x)\right]$$

où $\tilde{f}(\nu_x)$ représente la transformée de Fourier de la fonction $f(x)$.

L'effet de la transformée de Hilbert est, grâce à la fonction *signe*, de transférer l'information portée par les fréquences négatives vers les fréquences positives, sans perte d'information (pas de filtrage).

Étape 3 : Filtrage dans l'espace des fréquences spatiales La démodulation passe par la suppression des contributions non-modulées centrées autour de $\nu_y = 0$. Nous utilisons un filtre de Heaviside $H(\nu_y)$ centré sur la médiatrice située à $\nu_y = \theta_r/2\lambda_s$, c'est-à-dire à mi-chemin entre les deux contributions restantes.

Étape 4 : Transformée de Fourier inverse Nous repassons dans l'espace direct, afin de voir l'effet du filtrage sur les amplitudes complexes $\mathcal{E}_{REF}$ et $\mathcal{E}_{DATA}$. Les franges d'interférences ont bien été supprimées comme le montre les modules de $\mathcal{E}$, mais il reste un plan de phase lié au fait que la contribution restante après filtrage se trouve à une fréquence non-nulle.

Étape 5 : Recentrage des fréquences spatiales La phase linéaire résiduelle qui est responsable de la fréquence spatiale non-nulle est commune aux deux amplitudes complexes $\mathcal{E}_{REF}$ et $\mathcal{E}_{DATA}$, aux perturbations liée au plasma près. Nous soustrayons alors à $\mathcal{E}_{DATA}$ la phase de $\mathcal{E}_{REF}$, uniquement liée à l'angle entre les deux ondes sonde et référence :

$$\mathcal{E}_{DATA-Demod} = \mathcal{E}_{DATA}.e^{-i.\arg(\mathcal{E}_{REF})}$$

Cette méthode permet notamment de tenir compte d'un axe des franges qui ne soit pas totalement vertical, mais aussi d'une éventuelle courbure des franges (phases spatiale résiduelle, non-planéité de l'échantillon...). Nous corrigeons ainsi complètement la phase spatiale de modulation, sans connaissance *a priori* de l'angle θ_r. Cette opération n'a évidemment pas d'effet sur le module de $\mathcal{E}_{DATA-Demod}$. Une fois la rampe de phase soustraite, $\arg(\mathcal{E}_{DATA-Demod})$ laisse apparaître clairement les perturbations de phase induites par l'onde pompe.

En sortie d'étape 5, l'amplitude complexe est démodulée et correspond à U_{demod} de l'approche analytique. Une étape supplémentaire est toutefois nécessaire par rapport à l'approche analytique en raison du bruit existant dans le signal $\mathcal{E}_{DATA-Demod}$.

Étape 6 : Filtrage passe-bas L'emploi des filtres durs (fonctions de Heaviside) et les soustractions point à point de phase génèrent du bruit dont les fréquences spatiales dépassent largement la réponse impulsionnelle du système d'imagerie. Même en supposant une ouverture numérique de 1, la limite de résolution imposée par la diffraction concerne une fréquence de 5 fois plus faible que la fréquence de Shannon liée à la taille des pixels [77] : toutes les fréquences supérieures à la fréquence spatiale de coupure du système optique peuvent être raisonnablement être filtrées car non-physiques.

Nous filtrons les hautes fréquences dans l'espace de Fourier en multipliant $TF[\mathcal{E}_{DATA}]$ par une pupille apodisée (fonction hypergaussienne bidimensionnelle), afin d'éviter d'introduire de nouvelles hautes fréquences spatiales par cette opération.

Étape 6 bis Nous pouvons également remarquer que l'ensemble du traitement de démodulation ne se soucie pas de la phase spatiale absolue : dans l'étape 5 nous corrigeons la rampe de phase liée à la période des franges d'interférence à une constante près. Pour chaque amplitude complexe $\mathcal{E}_{DATA-Finale}$ mesurée, nous effectuons alors une

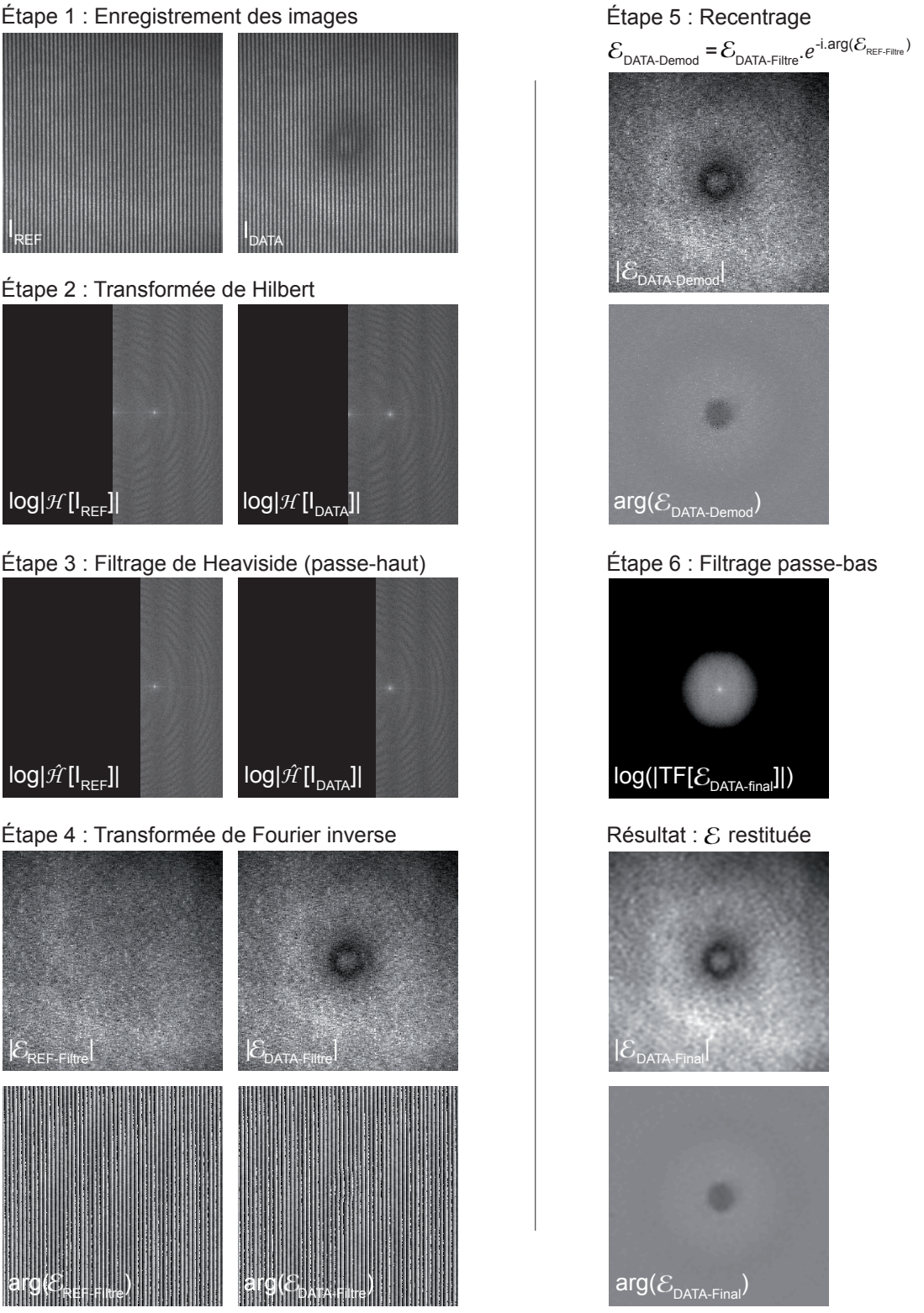

FIGURE 3.2 – Étapes principales de l'algorithme de démodulation permettant à partir d'un couple d'images I_{REF}/I_{DATA} de retrouver une mesure de $\mathcal{E}$. Les images dans l'espace des fréquences (étapes 2, 3 et 6) sont présentées en échelle logarithmique pour visualiser l'ensemble des contributions et les effets de filtrage.

soustraction de la phase moyenne sur le pourtour de l'image (assez loin de la région d'intérêt) de manière à réduire la phase absolue à zéro.

Résultat L'amplitude complexe démodulée numériquement $\mathcal{E}_{DATA-Finale}$ représente une mesure de l'amplitude complexe expérimentale $\mathcal{E}_{exp}$. La différence entre ces deux quantités réside principalement dans le bruit de mesure et le bruit numérique introduit par les étapes de démodulation. Une partie de ces bruits est éliminée par le filtrage passe-bas en étape 6. Cependant les bruits de plus basses fréquences vont se propager dans les prochaines étapes de calcul, en induisant alors des artéfacts pouvant être interprétés comme des variations d'indice.

3.1.2.3/ INDICE DE RÉFRACTION RECONSTRUIT

La méthode de mesure interférométrique permet de remonter à l'indice local $n(x, y, z)$, à la condition de connaître l'épaisseur effective e sur laquelle est intégré cet indice. Le long de l'axe de propagation z, nous allons alors échantillonner l'espace par des pas Δz séparant des plans dans lesquels nous mesurons $\mathcal{E}$. À partir de $\mathcal{E}$ connu dans plusieurs plans, nous reconstruisons le profil d'indice à partir de l'équation de propagation dans le milieu. Nous présentons ici deux méthodes similaires pour l'extraction de l'indice.

Extraction directe via l'équation de Helmholtz

De manière assez directe, nous pouvons extraire k^2 dans un plan $z = z_0$ grâce à l'équation de Helmholtz, en connaissance de l'amplitude complexe $\mathcal{E}$ et de son laplacien. Comme nous possédons une cartographie de $\mathcal{E}$ dans les deux dimensions transverses, la partie transverse du laplacien peut directement se calculer dans le plan z_0, mais la partie longitudinale doit être évaluée en mesurant $\mathcal{E}$ dans d'autres plans à proximité de $z = z_0$. Le laplacien longitudinal est alors approximé grâce aux plus proches plans voisins :

$$\begin{aligned}\Delta\mathcal{E}(x, y, z = z_0) &= \Delta_{\parallel}\mathcal{E} + \Delta_{\perp}\mathcal{E} \\ &\approx \frac{\mathcal{E}(x, y, z_0 + \Delta z) + \mathcal{E}(x, y, z_0 - \Delta z) - 2\mathcal{E}(x, y, z_0)}{\Delta z^2} + \Delta_{\perp}\mathcal{E}\end{aligned} \tag{3.20}$$

Ainsi nous calculons le vecteur d'onde k grâce à une différence sur des mesures établies dans trois plans $z = z_0, z_0 \pm \Delta z$ (les dépendances en x, y sont implicites, pour alléger les notations) :

$$\begin{aligned}k^2(z = z_0) &= \frac{-\Delta\mathcal{E}}{\mathcal{E}}, \\ &\approx \frac{\mathcal{E}(z_0 - \Delta z) + \mathcal{E}(z_0 + \Delta z) - 2\mathcal{E}(z_0)}{\Delta z^2\mathcal{E}(z_0)} - \frac{\Delta_{\perp}\mathcal{E}(z_0)}{\mathcal{E}(z_0))}\end{aligned} \tag{3.21}$$

La distance Δz qui sépare deux plans physiques dans lesquels nous mesurons l'amplitude complexe $\mathcal{E}$ doit être plus petite que $\lambda_s/2$ dans le milieu, afin d'assurer un échantillonnage correct de la phase accumulée sur la distance Δz pour satisfaire la condition de Shannon-Nyquist [77].

Cette méthode différentielle à trois plans constitue une bonne approche du Laplacien à l'ordre 2 et son erreur est proportionnelle à Δz^2. Il est possible de raffiner l'approximation du Laplacien en utilisant les 5 plus proches voisins (erreur en Δz^4), mais le gain tend à être mince par rapport au coût en temps des acquisitions expérimentales et en temps de calcul pour effectuer l'ensemble des démodulations.

Dans tous les cas, le fait que Δz soit petit devant λ_s ($\lambda_s/8$ dans notre cas) rend la méthode très sensible au bruit sur $\mathcal{E}_{DATA}$: la division par un Δz petit dans le terme du laplacien, tend à rendre trop importante l'incertitude sur le gradient (différences entre les 3 $\mathcal{E}_{DATA}$). Par cette méthode, le bruit moyen sur la valeur d'indice atteint 0,4 alors que l'amplitude des variations attendues se trouve justement autour de cette valeur.

Nous cherchons alors une méthode faisant monter moins rapidement le bruit.

Extraction par propagation numérique

Nous travaillons par la suite avec une méthode ne nécessitant que deux plans de mesure pour estimer la valeur de la variation d'indice induite par le plasma, de manière à réduire le nombre d'opérations différentielles à appliquer et ainsi réduire la sensibilité de l'indice extrait au bruit de notre méthode de mesure de $\mathcal{E}$. Cette seconde approche d'extraction d'indice se place toujours dans le cas $\Delta z < \lambda_s/2$ pour assurer le bon échantillonnage de la phase accumulée sur Δz.

Le principe est de comparer la propagation réelle entre les deux plans avec le résultat obtenu en partant du premier plan expérimental, auquel nous appliquons un propagateur numérique calculé pour le cas d'un milieu homogène. Cette méthode pré-suppose pour le calcul du propagateur numérique entre les deux plans la connaissance de l'indice moyen n_0, de la longueur d'onde λ_s et du pas Δz. Nous appliquons à $\mathcal{E}_{DATA}(x, y, z_0)$ un propagateur de Fresnel numérique, correspondant à une propagation vers le plan $z_0 + \Delta z$ en l'absence de modification de l'indice (milieu homogène d'indice n_0) :

$$\mathcal{E}_{prop}(x, y, z_0 + \Delta z) = \frac{-i}{\lambda}\frac{e^{ik\Delta z}}{\Delta z}\iint \mathcal{E}_{DATA}(x', y', z_0) e^{\frac{ik}{2\Delta z}[(x-x')^2+(y-y')^2]} \mathrm{d}x'\mathrm{d}y' \tag{3.22}$$

En pratique, le propagateur est appliqué dans l'espace de Fourier, sous la forme d'une multiplication par $e^{-ik_z\Delta z}$ où $k_z = \sqrt{n_0^2k_0^2 - k_x^2 - k_y^2}$, permettant d'obtenir une propagation en spectre d'ondes planes [99], en faisant l'hypothèse d'une onde sonde monochromatique.

Sur l'intervalle Δz, la différence de phase accumulée entre $\mathcal{E}_{DATA}(x, y, z_0 + \Delta z)$ et le terme propagé numériquement $\mathcal{E}_{prop}(x, y, z_0 + \Delta z)$ est alors théoriquement uniquement liée à la perturbation Δn :

$$\mathcal{E}_{DATA}(x, y, z_0 + \Delta z) = \mathcal{E}_{prop}(x, y, z_0 + \Delta z) e^{-ik_0\Delta n\Delta z}. \tag{3.23}$$

La variation d'indice Δn est alors égale à :

$$\boxed{\Delta n = \frac{i}{k_0\Delta z}\ln\left(\frac{\mathcal{E}_{DATA}(x, y, z_0 + \Delta z)}{\mathcal{E}_{prop}(x, y, z_0 + \Delta z)}\right)} \tag{3.24}$$

Afin de limiter les erreurs ponctuelles, nous effectuons en pratique les mesures dans trois plans $z = z_0, z_0 \pm \Delta z$ et nous calculons l'indice en réalisant l'extraction à partir de deux paires d'images prises sur deux intervalles voisins. L'indice en $z = z_0$ est calculé comme la moyenne des deux indices extraits.

La dépendance en $1/\Delta z$ provoque une montée du bruit plus limitée qu'avec l'approche précédente : la valeur moyenne du bruit d'indice est contenue à ±0,1 ce qui est donc plus acceptable.

Limites intrinsèques de la reconstruction de l'indice

La méthode se base sur le calcul d'un rapport d'amplitudes complexes : il existe deux cas de figures conduisant une indétermination sur l'indice extrait. Le premier cas existe lorsque la différence phase accumulée sur l'intervalle Δz excède 2π, puisque la phase absolue est établie à 2π près. Pour un espacement Δz = 100 nm entre deux plans, ceci correspond à un indice réel Δn_{lim} tel que $2\pi\Delta n_{lim}\Delta z/\lambda_s = 2\pi$ soit une variation d'indice réel local $\Delta n_{lim} = 4$. Il est assez peu probable que cette valeur soit atteinte puisque les amplitudes de variation d'indice réel attendues sont de l'ordre de quelques dixièmes [154].

Le second cas problématique existe pour les points tels que $|\mathcal{E}_{DATA}(z_0)| = 0$, entraînant un rapport divergeant vers l'infini. Ce cas est possible à proximité de la zone où se forme le plasma : la forte absorption associée à la diffraction conduisent à des valeurs d'intensité faibles au centre de la zone d'intérêt (voir figure 3.2, zones noires sur les images $|\mathcal{E}_{DATA}|$. Lorsqu'il existe un point tel que $|\mathcal{E}_{DATA}(z_0)| = 0$, il sera arbitrairement remplacé par une valeur moyenne prise sur les 8 plus proches voisins dans ce plan.

3.1.3/ IMPLÉMENTATION EXPÉRIMENTALE

3.1.3.1/ SONDES INTERFÉROMÉTRIQUES

Expérimentalement nous réalisons un interféromètre de Mach-Zehnder [206, 207] dans lequel les chemins optiques sont équilibrés sur le bras de référence par une ligne à retard. Nous générons le faisceau de référence, réplique de l'onde sonde, par une lame semi-réfléchissante placée en amont de l'échantillon traversé par la sonde. Une lame identique est utilisée en aval pour recombiner les deux faisceaux, et l'angle de la lame permet d'ajuster la largeur des franges d'interférences obtenues sur la caméra. Le principe de ce montage est illustré en figure 3.3.

La caméra utilisée pour imager la figure d'interférence possède une dynamique sur 14 bits, et une taille de pixels de 4,65 µm permettant de descendre à une résolution après grandissement de 22 nm/pixel. La résolution de l'ensemble du système est cependant limitée par la diffraction à $\lambda_s/2$ (fréquence de coupure optique : $\nu_{c,o}$ = 1,4 µm^{-1}). Nous choisissons le filtrage numérique dans l'espace de Fourier est choisi pour limiter la résolution numérique à 110 nm (coupure à $\nu_{c,n}$ = 2,5 µm^{-1}) : nous obtenons une sur-résolution numérique d'un facteur 1,8 par rapport à la résolution optique.

Nous considérons qu'au niveau de l'échantillon l'onde sonde est collimatée, et son diamètre à $1/e^2$ est de 20 µm (longueur de Rayleigh associée : 785 µm), couvrant pratiquement l'ensemble du champ observé par la caméra (champ total : $\approx 33 \times 22$ µm^2).

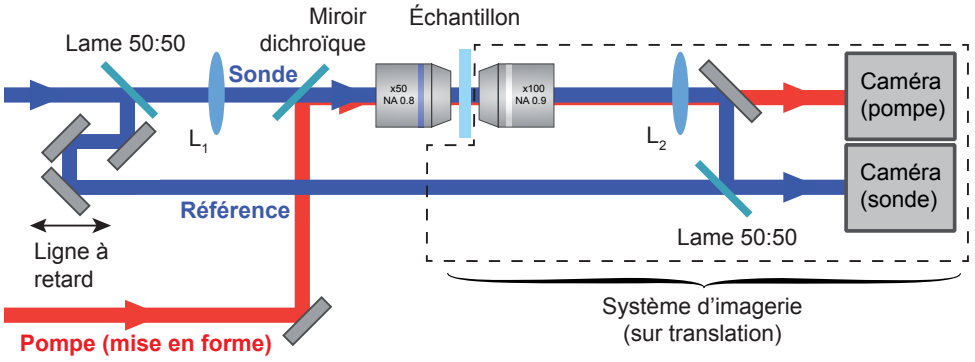

FIGURE 3.3 – Interféromètre de Mach-Zehnder dédié à l'holographie du plasma excité par une onde pompe (en rouge) dans un échantillon. Un premier télescope ($M = \times 1/278$) réduit le faisceau sonde à un diamètre de 20 µm au niveau de l'échantillon, tandis que le second permet d'imager sur la caméra le faisceau transmis avec un grandissement $M' = \times 208$. La caméra pompe sert à l'imagerie du faisceau de Bessel lors de la préparation de l'expérience.

L'énergie des deux impulsions sonde et référence est identique et se situe à E_s = 3 nJ. L'énergie sonde est donc suffisamment faible pour ne pas induire d'interaction avec le milieu à sonder ($I_{crete} < 10^{10}$ W.cm^{-2}).

L'état de polarisation commun aux deux faisceaux est contrôlé par une lame demi-onde, permettant de choisir entre polarisations verticale et horizontale au niveau de l'échantillon. Ce degré de liberté permet notamment d'ajuster pour les plus faibles délais la visibilité de l'effet Kerr visible, qui comme nous l'avons vu dans le chapitre 2, possède une réponse environ 6 fois plus faible pour des polarisations pompe-sonde croisées plutôt que colinéaires.

3.1.3.2/ COMPENSATION DE LA DISPERSION

La présence sur le bras sonde de plusieurs optiques réfractives d'épaisseur non-négligeable (lentilles, objectifs de microscopes...) entraîne un déséquilibre de l'interféromètre en terme de dispersion. Sans compensation, les franges d'interférences ont un contraste très faible (<0,05) et parviennent à peine à sortir du bruit de la caméra. Nous réalisons une compensation de dispersion consistant à répliquer un à un les composants optiques sur le bras de référence. Après compensation de la dispersion, le contraste des franges atteint 0,95 et le montage réel correspond à la situation présentée en figure 3.4.

Nous plaçons les optiques de manière à reproduire également les fonctions de télescopes à l'identique : le positionnement micrométrique permet alors d'obtenir sur chaque bras un couple d'objectifs de microscopes dont le point confocal est commun. Ce point est atteint pour une même position de la platine de translation déplaçant le système d'imagerie, ainsi la différence de phase quadratique accumulée lors d'un déplacement du système d'imagerie est nulle : le profil des franges ne varie pas avec un changement de plan d'observation.

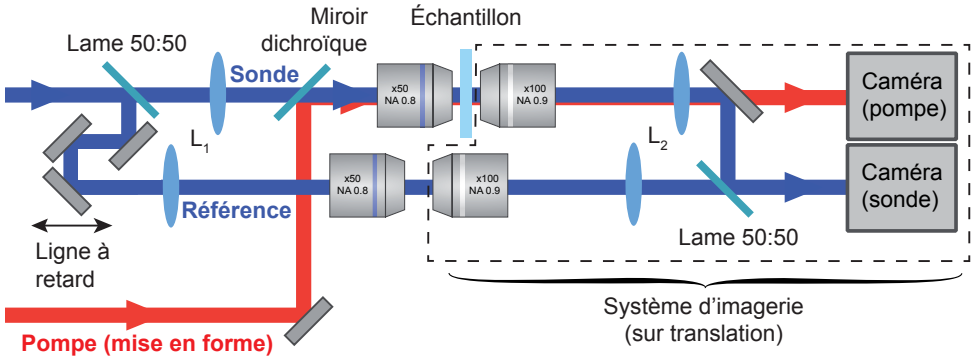

FIGURE 3.4 – Même situation qu'en figure 3.3, mais avec compensation de dispersion cette fois : les lentilles et objectifs de microscope sont répliqués sur le faisceau de référence, avec les mêmes relations de confocalité. L'ensemble du bloc cerné de pointillés est déplacé uniformément lors de la translation du système d'imagerie.

3.1.3.3/ FAISCEAU DE BESSEL UTILISÉ

Par rapport à la mesure à réseau d'indice transitoire, nous modifions le profil de phase affiché sur le SLM : nous générons un faisceau de Bessel dont le profil d'intensité est optimisé par mise en forme spatiale en phase et intensité de manière à assurer une intensité le long de l'axe optique la plus constante possible. Les extrémités du faisceau sont choisies à profil parabolique, pour limiter la gamme de fréquences spatiales nécessaires à la création de ce faisceau et surtout pour limiter les éventuelles distorsions non-linéaires [102].

La figure 3.5 montre le profil expérimental du faisceau ainsi généré, en régime linéaire dans l'air, mettant en évidence une parfaite symétrie de révolution et une intensité quasi-constante sur 30 µm au long de la propagation. Pour réaliser la génération de nano-plasma à observer en imagerie pompe-sonde, le faisceau est inséré sur 30 µm dans l'échantillon, conduisant à une distance d'interaction effective d'environ 45 µm en raison de l'indice des milieux (en moyenne, n = 1,5).

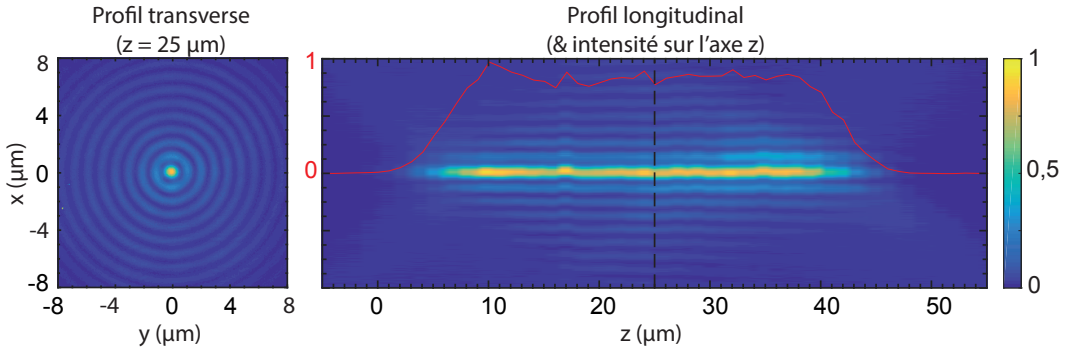

FIGURE 3.5 – Coupes transverses (x, y) et longitudinales (x, z) du faisceau de Bessel expérimental dans l'air (échelles normalisées). Le profil le long de l'axe z est présenté en rouge sur la section longitudinale et montre la constance de l'intensité sur 30 µm. La ligne pointillée indique le plan dans lequel est extraite la section transverse.

3.1.3.4/ STABILITÉ DE L'EXPÉRIENCE

Par les différentes étapes de reconstruction de l'indice, nous obtenons une méthode basée sur des mesures différentielles. En premier lieu, la démodulation nécessite un couple d'images I_{REF} et I_{DATA}, permettant par soustraction de la phase spatiale contenue dans la première de démoduler l'amplitude complexe de la seconde. En second lieu, la restitution de Δn utilise le rapport de deux cartographies d'amplitudes complexes. Quatre images interférométriques sont alors mises en jeu, et le caractère différentiel de la mesure impose à ces images de partager les même propriétés sur les franges d'interférence et le pointé tir à tir.

Stabilité liée aux franges

La démodulation des hologrammes par la mesure directe sur l'angle θ_r séparant les deux faisceaux sonde et référence repose sur l'hypothèse que cet angle est constant d'une image à l'autre. Autrement dit, il est crucial que la période des franges soit identique entre chaque image d'une paire I_{REF}/I_{DATA}. Nous remarquons que la phase absolue des franges importe peu pour notre extraction d'amplitude complexe : seule importe la période des franges.

Nous mesurons la période spatiale des franges pour 2000 images (une image = un tir laser unique), sur une période de 10 secondes. Lors d'une acquisition d'une paire d'images I_{REF}/I_{DATA}, le temps entre deux images est de l'ordre de 1 à 2 s : une stabilité sur 10 s garantit alors la possibilité d'une démodulation correcte.

Pour l'alignement de l'expérience lors de la mesure, la fréquence spatiale des franges est de 2,34±0,04 µm^{-1}. La dispersion de la fréquence spatiale sur l'ensemble du champ observable est contenue dans la barre d'incertitude (mesure non-présentée ici). Sur 2000 images, les franges se déplacent latéralement sur l'ensemble de la séquence et mettent en évidence une variation de chemin optique dans l'interféromètre. Nous mesurons une amplitude maximale de déplacement des franges de 80 nm, ce qui correspond à une stabilité des optiques à $\lambda_s/10$. Néanmoins la fréquence spatiale propre des franges reste constante sur l'ensemble des images, à moins de 1% près.

Stabilité de pointé

La stabilité de pointé n'intervient pas pour la démodulation de l'amplitude complexe, mais en revanche le pointé devient crucial en ce qui concerne la reconstruction de l'indice. En effet, le centre du plasma observé sur la caméra doit être situé sur le même pixel de manière à ce que les axes x et y, centrés sur le plasma, restent constants d'une image à l'autre. Nous imageons sur la seconde caméra (dédiée au faisceau pompe) le faisceau de Bessel généré dans l'échantillon, en régime linéaire et sur 1000 tirs.

Afin d'observer l'amplitude des mouvements conjoints du faisceau et du système d'imagerie, nous traçons l'évolution de la position du barycentre G du lobe central du faisceau de Bessel selon les deux axes de la caméra (figure 3.6). L'amplitude des fluctuations de position ne dépasse pas la résolution d'un pixel (22 nm/pixel après grandissement), et l'axe principal de vibration est l'axe y horizontal. Nous observons ici un des modes de vibration du système d'imagerie, qui fait office de système masse-ressort[2]. Les fluctua-

2. L'ensemble du système pèse 8 kg et est placé sur poutres métalliques à une trentaine de centimètres de la surface de la table optique.

tions visibles sur l'axe x sont lentes (période $\approx$ 10 s) et de faible amplitude : nous les associons aux lentes turbulences de l'air sur le trajet optique long d'environ 12 m entre l'amplificateur et l'échantillon.

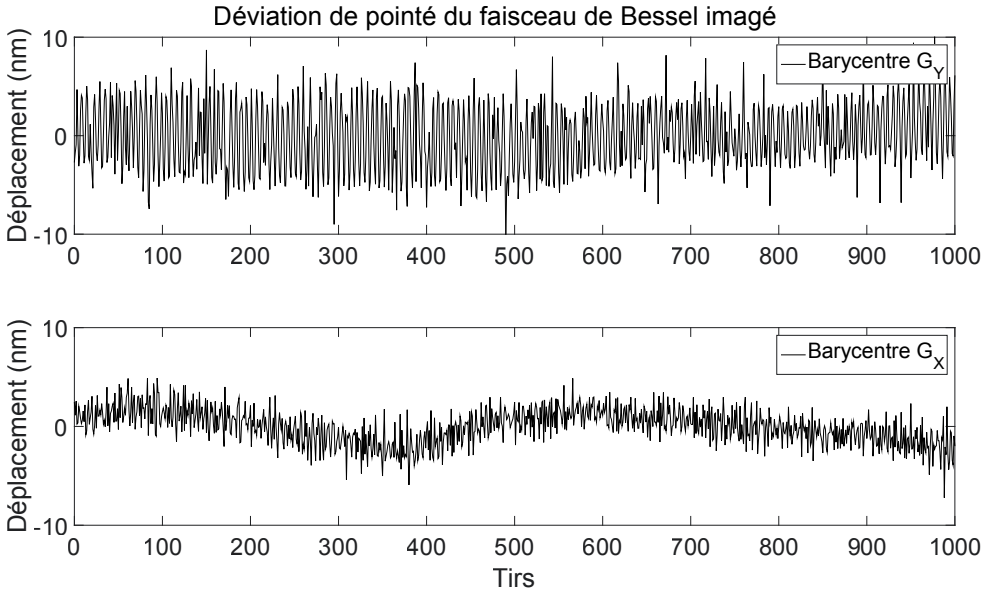

FIGURE 3.6 – Étude de stabilité par imagerie d'un faisceau de Bessel sur le trajet optique pompe : tracé des positions selon les axes x et y du barycentre G du lobe central. L'amplitude de déviation est inférieure à un pixel (22 nm/pixel).

La faible ampleur de ces mouvements nous démontre une excellente stabilité du système, bien suffisante pour la concrétisation de notre expérience, à la fois mécaniquement que thermiquement puisque les turbulences de l'air ne jouent pas un rôle prépondérant dans la déviation du faisceau.

Constance de l'intensité incidente et mesurée

La répétabilité de l'interaction laser-matière est un point clé de la réussite de notre expérience pompe-sonde. À l'étude de stabilité de l'expérience nous ajoutons une mesure de la constance des impulsions uniques fournies par le laser mais également une vérification de la constance de réponse de la caméra. En l'absence de signal optique (ni sonde, ni pompe), la caméra possède un signal d'obscurité moyen aux alentours de 250 ADU (sur 16384) et dont la dispersion est de 1,1% sur 1000 images ($\pm$ 2,7 ADU).

Comparativement, en présence d'un faisceau de Bessel (en régime linéaire) dont l'intensité maximale atteint 10000 ADU sur la caméra, la fluctuation d'intensité tir à tir (ou image à image) vue par la caméra, incluant donc les fluctuations du laser lui-même, ne dépasse pas 0,8% point à point et son écart type est inférieur à 0,18% sur 1000 images.

La certitude que la combinaison des fluctuations d'intensité du laser et de l'intensité lue par la caméra n'excède pas 1% nous confirme la possibilité de réaliser une expérience pompe-sonde sans biais significatif de répétabilité tir à tir.

Correction des défauts mécaniques liés aux platines de translation

La présence de télescopes de fort grandissement sur les faisceaux sondes entraîne une

forte sensibilité aux moindres variations de pointé dans le chemin optique en amont. Lors de la translation de la longue platine motorisée servant à ajuster le délai pompe-sonde (longueur 1 m), nous avons pu voir le faisceau effectuer un aller-retour vertical sur la caméra. Les défauts de planéité de la platine, pourtant donnés à moins de 1 µrad près, sont ici mis en évidence. Afin de s'en affranchir par compensation, nous installons sur le miroir de renvoi placé sur la platine une cale piézo-électrique, interfacée avec l'ordinateur de contrôle de manière à rattraper ces défauts angulaires.

L'amplitude des corrections atteint crête à crête 1 µrad sur l'ensemble de la longueur et la résolution minimale de correction est de 0,02 µrad. À partir de 10 points de mesure situés tous les 10 cm sur la platine, nous établissons le profil de correction par interpolation sur l'ensemble des positions accessibles à la platine. De cette manière nous garantissons la stabilité de pointé du faisceau sonde même pour les plus grands délais de la ligne à retard (maximum 6,6 ns) et minimisons l'effet de la translation.

3.1.4/ Discussion sur les limites de notre méthode

Avant de plonger tête baissée dans l'interprétation physique de nos données, un petit recul critique est nécessaire afin de distinguer les observations physiques des artefacts liés à la méthode employée ici.

3.1.4.1/ Bruit d'indice

Le premier constat qu'il convient d'adresser sur les mesures obtenues est le bruit présent sur l'ensemble des images. Nous observons un bruit granulaire d'amplitude ±0,1 sur les deux parties réelle et imaginaire et dont la taille des grains dépend de l'opération de filtrage numérique passe-bas appliquée en fin de démodulation des images interférométriques (étape 6 de la figure 3.2). La nature cohérente de l'onde sonde produit un léger effet spéculaire et génère sur les images une granularité de haute fréquence, filtrée numériquement mais seulement de façon partielle.

Cet effet limite spatialement notre mesure, en dégradant la résolution spatiale minimale accessible. Le filtrage numérique est ajusté pour qu'un pixel isolé engendre une granularité après filtrage inférieure à $\lambda_s/4$ (*in extenso*, la réponse impulsionnelle du filtrage est plus petite que celle liée aux optiques). Le bruit est particulièrement dominant dans les zones où les franges d'interférence possèdent un faible contraste et où l'intensité recueillie par la caméra est faible (pour $r > 8$ µm). L'utilisation de la moyenne de deux indices, établis sur les intervalles $[z_0, z_0 + \Delta z]$ et $[z_0 + -\Delta z, z_0]$ permet de diminuer point à point l'influence de ce bruit : une moyenne sur davantage de mesures serait à envisager ainsi qu'un filtrage numérique optimisé pour minimiser ce bruit.

3.1.4.2/ Cross-talk sur l'indice

Il apparaît que notre algorithme d'inversion permettant de remonter aux variations d'indice nous renvoie une contribution imaginaire de l'indice pour de phénomènes conduissant théoriquement à une variation d'indice purement réelle (effet Kerr, onde mécanique de compression...). Ceci témoigne d'un effet de *cross-talk* entre parties réelle et imaginaire.

Notre suspicion est renforcée par l'observation d'une différence de signe sur la partie imaginaire de l'indice entre la silice fondue et le couple borosilicate-saphir à l'échelle sub-picoseconde (figure 3.7) : si l'on en croit l'indice restitué, dans un cas nous aurions une émission à la longueur d'onde λ_s tandis que pour les deux autres, le plasma est absorbant (hypothèse la plus physiquement probable). Cette incompatibilité tend à nous rendre précautionneux sur les interprétations de cette contribution imaginaire.

3.1.4.3/ De l'importance de la stabilité de pointé

Lorsque le positionnement du centre de la zone d'intérêt (plasma, nanocanal, onde mécanique...) n'est pas confondu d'un plan z_0 à son voisin $z_0 \pm \Delta z$, le caractère différentiel de la reconstruction numérique implique un indice reconstitué dont le profil est dipolaire. Ce profil dipolaire est alors présent sur l'ensemble des contributions physiques, plasma comme ondes mécaniques : une telle observation n'est donc vraisemblablement pas physique.

Deux effets peuvent co-exister et être à l'origine de ce défaut : 1° le champ observé sur l'échantillon s'est déplacé (relaxation mécanique de montures à pointeau-ressort par exemple) et le centre de l'image $r = 0$ n'est pas le même entre les deux séries de mesures $z = z_0$ et $z = z_0 \pm \Delta z$; 2° le pointé de l'onde sonde n'est pas parfaitement colinéaire avec l'axe de déplacement de la platine de translation selon l'axe z : le pointé est vraisemblablement un point critique de cette mesure, du fait du fort grandissement employé. Dans un tel cas, le propagateur numérique utilisé pour retrouver l'indice n (équation 3.22) n'est que partiellement valide et omet un terme traduisant cet angle relatif. L'indice reconstruit possède alors une pente moyenne, conduisant à un aspect dipolaire du profil dans le plan (x, y). Une correction numérique pourrait être appliquée *a posteriori*, mais la présence du bruit granulaire nous limite dans la détection de cette pente moyenne.

La principale difficulté provient de l'absence lors de la phase d'alignement d'un critère de bon alignement du faisceau selon l'axe z, sans avoir à réaliser une opération d'extraction d'indice : l'axe de translation en z de l'échantillon *n'est pas nécessairement* colinéaire à l'axe optique du faisceau de Bessel par exemple. L'ensemble de ces points sera à l'étude dans les mois à suivre l'écriture de ces lignes.

3.1.4.4/ Limites liées à la quantité de données

Un point mineur doit être mentionné à propos du stockage des données. Le but final de l'expérience est d'obtenir une cartographie à 3+1D de l'indice de réfraction, c'est-à-dire que la mesure présentée en figure 3.7 doit être répétée dans une succession de plans z tout au long de la longueur du faisceau de Bessel ($\approx$ 80 µm dans nos milieux).

Pour chaque plan, la mesure de $n(x, y)$ requiert la mesure de 6 images de 1024×1024 pixels et de profondeur 14 bits, pour chaque délai τ : pour 100 délais, la quantité de données brutes acquises atteint 1,6 Go. L'extension à la troisième dimension et l'exploration de l'espace des paramètres laser conduit alors à une quantité de données dont la croissance doit être surveillée.

De plus le travail de traitement à partir de ces images brutes dans le domaine complexe double l'allocation de mémoire vive nécessaire à la reconstruction de l'indice, qu'il est alors déraisonnable de penser traiter directement à 3 dimensions.

Ces détails techniques sont aujourd'hui heureusement peu limitants grâce aux progrès sur les dispositifs de stockage de mémoire physique et vive. Cependant, l'espace des paramètres lasers est vaste en raison du grand nombre de degrés de liberté d'intérêt (influence de E_p, τ_p, θ, polarisation pompe, ordre n du faisceau de Bessel...) et nous contraint pour le moment à nous restreindre.

3.2/ DYNAMIQUE D'INTERACTION LASER-MATIÈRE

Passons à présent aux résultats obtenus par la mise en œuvre de la méthode d'imagerie de l'indice de réfraction décrite précédemment. Nous faisons ici varier les conditions d'illumination de l'échantillon par le faisceau pompe et le milieu d'interaction (silice fondue, saphir en coupe C et verre borosilicate Schott D263), et nous réalisons une mesure de l'évolution temporelle de la distribution d'indice de réfraction dans un plan donné en faisant varier le délai pompe-sonde. Le faisceau pompe est mis en forme d'un faisceau de Bessel d'ordre 0 à haut angle (θ = 26° dans l'air), dont le profil longitudinal d'intensité est optimisé pour être constant sur plusieurs dizaines de micron [102].

Nous nous attachons particulièrement à observer les effets liés au plasma que l'on attend pendant les premières picosecondes (le temps de vie du plasma reste encore à déterminer), mais également à la dynamique de formation d'un nanocanal dans le milieu. Des ondes mécaniques sont attendues sous forme d'ondes de choc ou d'ondes acoustiques [127, 152, 208] pour des délais nanoseconde et leur propagation pourra être étudiée si le contraste de celles-ci le permet. Ces ondes mécaniques prennent un profil cylindrique dans notre cas particulier, grâce à l'utilisation de faisceaux de Bessel [145].

L'ensemble des résultats est présenté de manière identique : les indices de réfraction mesurés sont donnés autour de l'indice moyen n_0 en l'absence de perturbation (en blanc). Les variations positives d'indice sont affichées en rouge, et négatives en bleu.

3.2.1/ OBSERVATIONS : DYNAMIQUE TEMPORELLE MULTI-ÉCHELLE

3.2.1.1/ DYNAMIQUE SUB-PICOSECONDE

Pour des délais pompe-sonde τ inférieurs à 1 ps, nous pouvons considérer principalement les phénomènes liés au couplage électronique dans le milieu [1] tels que l'absorption multiphoton, l'ionisation, les résonances sur le plasma... mais aussi pour des délais faibles ($\tau \approx \tau_p$) les effets non-linéaires résultant du couplage pompe-sonde, comme l'effet Kerr présenté dans le chapitre précédent.

Ces deux contributions sont théoriquement distinguables grâce aux propriétés de l'indice de réfraction associé : l'effet Kerr tend à faire croitre localement l'indice réel dans les régions de forte intensité optique, sans induire de modification d'indice imaginaire ; une densité de charges ρ fait diminuer l'indice réel ($\varepsilon_r \to 0$ lorsque $\rho \to \rho_{cr}$) et modifie l'indice imaginaire (absorption locale).

La figure 3.7 présente les résultats de mesures réalisées dans trois milieux différents, pour les mêmes paramètres laser. Les plans voisins permettant la reconstruction de l'indice sont espacés de 100 nm du plan z_0. L'impulsion pompe de durée 110 fs (FWHM)

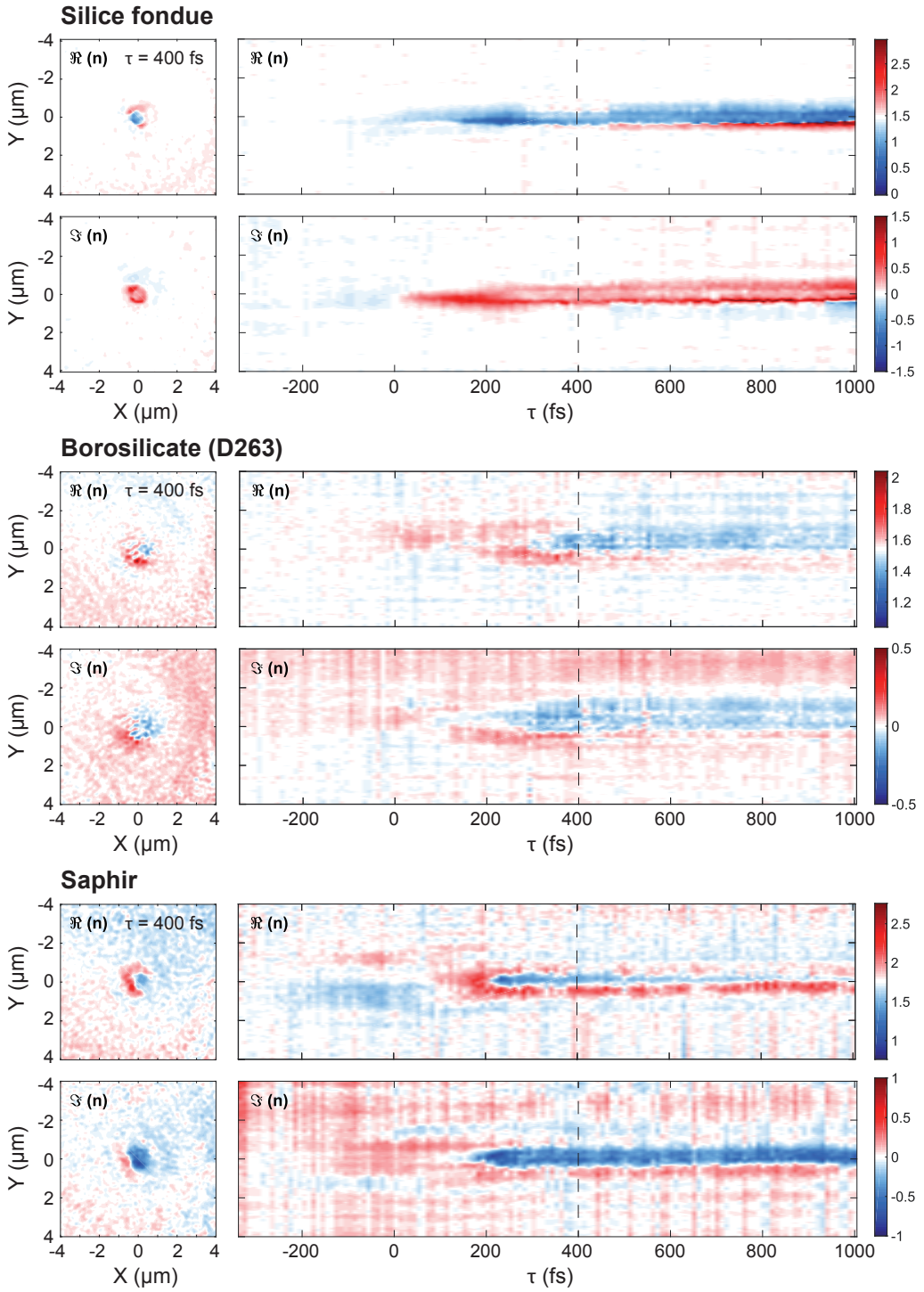

FIGURE 3.7 – Dynamique sub-picoseconde de l'indice de réfraction (réel et imaginaire) en fonction du délai τ dans trois matériaux (E_p = 1 µJ, τ_p = 110 fs, θ = 26°, polarisations pompe et sonde selon l'axe x). Autour de τ = [-200, 200] fs, la contribution de l'effet Kerr est visible ; au delà de 200 fs, la contribution liée à l'ablation (plasma) devient dominante dans tous les cas. Une section dans le plan (x, y) est extraite à τ = 400 fs (ligne pointillée). On notera que les échelles sur l'indice sont différentes d'un milieu à l'autre, et centrées autour de n_0 pour les cartographies $\mathrm{Re}(n)$.

possède une énergie par impulsion de 1 µJ, et est mise en forme de faisceau de Bessel dont l'angle conique dans l'air est de 26°. Du fait des indices différents pour chaque milieu (pour la silice fondue n_0 = 1,47, le borosilicate D263 n_0 = 1,54 et le saphir n_0 = 1,76), les angles coniques réels du faisceau de Bessel dans le milieu sont respectivement de 17,4, 16,5 et 14,4°. Bien que l'angle conique soit différent, la fréquence spatiale du faisceau de Bessel reste constante puisque la longueur d'onde est multipliée par un facteur n_0, conduisant dans notre cas à un lobe central identique dans tous les milieux et de diamètre à mi-hauteur : 0,66 µm.

Le bruit sur les valeurs de n est assez important, et hormis dans le cas du saphir où l'amplitude de l'indice mesuré sort aisément du bruit, l'amplitude des fluctuations liées au bruit reste de l'ordre de grandeur des perturbations mesurées induite par l'impulsion pompe. Néanmoins, des tendances sont d'ores et déjà observables.

Pour les trois milieux, nous pouvons distinguer principalement deux zones dans l'évolution $n(\tau)$: dans la zone τ = 0 ± 200 fs, nous observons une faible modification d'indice transitoire ($|\Delta n|$ <0,5), puis survient progressivement une modification plus importante ($|\Delta n| > 1$) qui perdure jusqu'à 1 ps. Cette dernière se produit à différents instants de la dynamique suivant le matériau utilisé : autour de 0 fs pour la silice fondue, 300 fs pour le borosilicate et 200 fs pour le saphir.

Distinguons pour un temps les contributions réelles et imaginaires de l'indice, afin de comparer plus quantitativement les comportements de chaque milieu.

Variation de la partie réelle $\mathrm{Re}(\Delta n) = \Delta n_r$

La partie réelle de l'indice se comporte qualitativement de manière assez proche d'un milieu à l'autre. En considérant uniquement la modification la plus visible sur la section à τ = 400 fs, nous observons au centre de l'image à une diminution de l'indice de réfraction compatible avec le modèle de Drude ($\varepsilon_r \to 0$ lorsque $\rho \to \rho_{cr}$), cernée d'une zone annulaire d'indice supérieur.

Nous reviendrons sur la question du diamètre de la zone affectée par le plasma, mais la zone bleue dans laquelle l'indice décroit possède un diamètre de 0,65 µm, correspondant au diamètre à mi-hauteur du faisceau de Bessel. La diminution d'indice Δn_r au centre atteint -1∓0,1 dans la silice fondue (à τ = 250 fs), contre seulement -0,3∓0,1 dans le borosilicate (τ = 380 fs) et -0,6∓0,1 dans le saphir (τ = 250 fs), tandis que sur la couronne extérieure l'indice pris à un délai identique croit respectivement de 0,05±0,1 ; 0,2±0,1 et 0,4±0,1.

Il est à noter que pour le cas de la silice fondue, la zone rouge apparaissant sur l'indice réel à partir de 600 fs correspond à un saut de phase ($\Delta\phi > 2\pi$) et l'indice reconstruit est alors connu à $\pm n_0$ près : ceci explique donc la présence d'un indice proche de 0 à proximité directe d'un indice supérieur à 2,5. Il est localement possible que nous ayons atteint les limites de l'équation de propagation, soit par un gradient de densité plasma trop important, soit par dépassement de la densité critique ρ_{cr}.

À partir de 400 fs, nous entrons dans un régime pseudo-établi jusqu'à au moins 1 ps, dans lequel l'évolution est légère. D'autres séries de mesures non présentées ici montrent que ce régime stable s'étend sur plusieurs dizaines de picosecondes, avant que ne débutent les effets survenant dans les échelles de temps sub-nanoseconde et nanoseconde.

Variation de la partie imaginaire : $\mathrm{Im}(\Delta n) = \Delta n_i$

Le comportement de la partie imaginaire de l'indice est similaire entre le borosilicate et le saphir (diminution d'indice au centre, cernée d'une couronne d'augmentation d'indice). La diminution d'indice correspond dans notre cas à une absorption, plus localisée et intense dans le cas du saphir (Δn_i = -0,4∓0,1) que dans le borosilicate (Δn_i = -0,05∓0,05).

En revanche, il existe une importante différence avec le cas de la silice fondue. Nous notons ici une augmentation de l'indice (interprétée comme une émission à 400 nm par le milieu) dont l'amplitude atteint Δn_i = +0,5±0,2. L'observation de l'amplitude complexe nous permet de voir une incompatibilité de cette valeur avec le comportement réel observé : les franges d'interférences disparaissent au centre de l'image dans le bruit de fond de la caméra et c'est davantage une absorption qui est attendue. Nous suspectons ici que la reconstruction soit sensible à un problème de signe sur n_i, puisqu'une simple inversion du signe de la reconstruction de n_i conduit à un comportement très similaire à celui des autres milieux. De manière générale, une vigilance toute particulière sera accordée par la suite à l'interprétation des signes de n_i et une recherche de l'origine de ce problème est en cours.

Effet Kerr

L'effet Kerr est attendu sur nos mesures comme une variation de n_r uniquement, dans la période $\tau = \pm\tau_p$ environ. Nous observons cependant une modification à la fois sur n_r *et* sur n_i dans les trois milieux. Dans la silice fondue, où $n_2(\mathrm{SiO_2}) = 4 \times 10^{-16}$ cm^2.W^{-1} [187], le maximum d'intensité local dans le lobe central atteint 1,6×10^{14} W/cm^2 et correspond d'après la loi $\Delta n = n_2 I$ à une modification d'indice de réel de $\Delta n_{Kerr} = 6,4 \times 10^{-2}$. Dans le saphir, où $n_2(\mathrm{Al_2O_3}) = 3,1 \times 10^{-16}$ cm^2.W^{-1} [209], cette modification est au maximum de $\Delta n_{Kerr} = 4,9 \times 10^{-2}$.

Dû au bruit granulaire de l'ordre de 10^{-1} sur l'indice, la contribution de l'effet Kerr ne sort pas clairement du bruit de fond et nous ne pouvons pas utiliser pour le moment le principe inverse, permettant de déduire le profil d'intensité $I(x, y)$ à partir de la variation d'indice mesurée. Nous avons le bon espoir qu'après amélioration de l'algorithme d'inversion, ce genre de mesure sera possible et nous autorisera à reconstruire le profil d'intensité pour chaque situation.

La faible amplitude des variations d'indice rend la mesure assez délicate à interpréter. Toutefois pour $\tau \in$ [-100, 100] fs, une variation d'indice est visible sur une assez large zone (rayon d'environ 1 µm) pour le borosilicate et le saphir. Nous notons une variation d'indice n_r quasi-nulle pour la silice fondue. L'amplitude est de Δn_r = 0,1± 0,05 pour le borosilicate et $|\Delta n_r|$ = 0,2 pour le saphir[3].

Nous remarquons que, si l'on suppose que le signe de n_i est effectivement faux pour la silice fondue, la variation de n_i est similaire pour les trois milieux : Δn_i = + 0,1±0,05. La présence d'un indice imaginaire positif renvoie à une variation du signal d'amplitude complexe : nous remarquons que cette variation correspond temporellement à un sursaut présent à la fois sur la phase et l'amplitude sur l'amplitude complexe du champ démodulé $\mathcal{E}_{DATA}$, et dont la trace temporelle suit le profil d'intercorrélation établi dans le chapitre 2. Nous suspectons que la variation d'indice Δn_{Kerr} induite soit suffisante pour générer un mode guidé de la sonde à l'emplacement des lobes les plus intenses du faisceau de

3. Un problème d'instabilité de pointé, discuté dans la section 3.1.4.3, ne nous permet pas d'obtenir une mesure absolue de la variation d'indice du fait de l'aspect dipolaire du profil d'indice reconstruit.

Bessel lorsque le délai τ est suffisamment faible. Cet effet ayant été observé de manière assez récente, de plus amples mesures seront nécessaires pour étayer cette hypothèse.

3.2.1.2/ DYNAMIQUE NANOSECONDE

La dynamique nanoseconde englobe les phénomènes de couplage entre le plasma et le milieu via la diffusion électronique et électron-phonon, mais aussi les phénomènes de relaxation de l'énergie mécanique accumulée aux abords de la zone d'interaction. Une partie de cette énergie se libère donc sous forme d'ondes mécaniques, que nous parvenons à observer sur la plage de délai [0, 2] ns. Au delà de 2 ns, les ondes mécaniques ont déjà quitté le champ observable (22×22 µm^2).

La figure 3.8 montre la dynamique des trois matériaux présentés précédemment. L'impulsion d'excitation est identique pour les trois cas : le faisceau pompe possède une énergie de 1 µJ, une durée d'impulsion de 110 fs et est mis en forme d'un faisceau de Bessel à $\theta = 26°$ (dans l'air) dont 30 µm sont insérés dans l'échantillon en face de sortie (longueur d'interaction : 45 µm). L'onde pompe est polarisée linéairement selon l'axe y, tout comme l'onde sonde.

Nous remarquons immédiatement une différence significative de comportement entre ces trois milieux. La silice fondue se caractérise par le développement d'une onde mécanique dont la propagation débute dès 40 ps, et un second front est observable, décalé de 200 ps par rapport au premier front d'onde.

Dans le borosilicate, nous assistons au développement d'une succession d'ondes mécaniques intenses à partir de 60, 200, 900 ps et 1,1 ns respectivement pour les plus intenses. Au centre de l'image, nous remarquons également une plus forte localisation des variations d'indices, contenues dans un rayon inférieur à 1 µm.

Le saphir montre une forte variation d'indice réel, très localisée autour de $r = 0$ (rayon $\approx$ 400 nm) et l'évolution sur 2 ns est assez faible globalement, hormis un lent élargissement de la zone affectée et deux inversions de signe des modifications d'indice entre 0 et 300 ps puis à partir de 1,2 ns. La variation d'indice est principalement réelle jusqu'à 1,2 ns et de grande amplitude : Δn_r = -1$\mp$0,1.

Bien qu'elle ne soit pas visible sur la figure 3.8, une onde mécanique est bien présente dans le cas du saphir et se développe dès $\tau = 20$ ps, mais sa faible intensité ($|\Delta n| \approx$ 0,1) la rend quasiment confondue avec le bruit de fond. En jouant sur les paramètres de visualisation, il est possible de rendre apparente cette onde (figure 3.9).

La mécanique des ondes de compression est respectée (même si quantitativement nous resterons prudent face à l'interprétation à donner) : pour chaque onde mécanique, nous observons une variation positive de $\mathrm{Re}(n)$ située à l'extérieur d'une variation négative, correspondant à un front de compression puis d'extension respectivement.

Dans les trois cas, une lente évolution est visible entre 1 et 2 ns, sous forme d'une perte de contraste dans la silice fondue et d'un élargissement de la zone modifiée pour le borosilicate (et le saphir). La diminution de $|\Delta n|$ dans la silice fondue pourrait provenir d'une relaxation du plasma dans le milieu.

Pour les verres, l'évolution lente à l'échelle nanoseconde jusqu'à la formation d'un nanocanal ou d'une modification permanente d'indice de réfraction pourrait cependant conti-

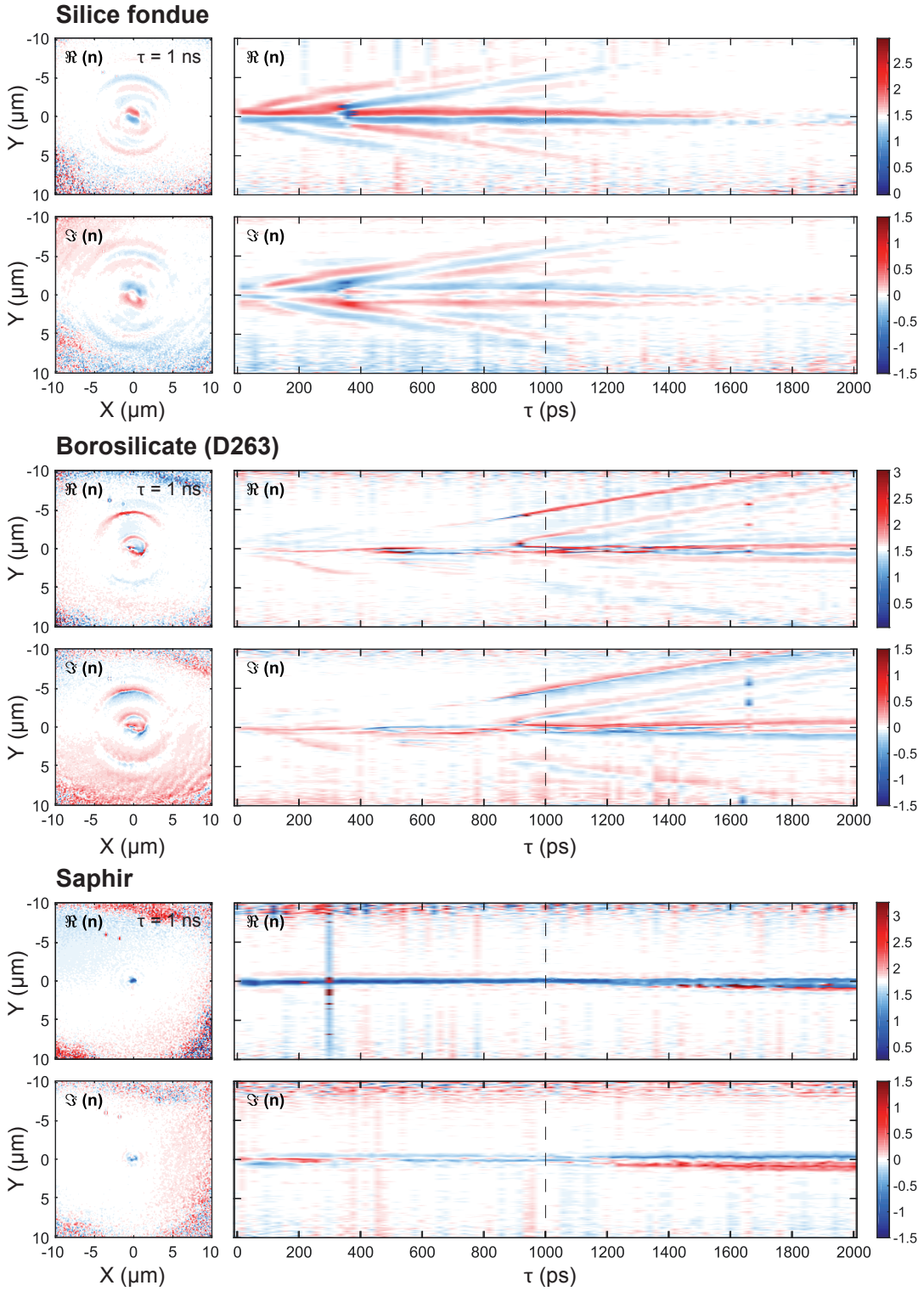

FIGURE 3.8 – Comparaison de la dynamique pour des délais inférieurs à 2 ns, dans 3 milieux différents et pour une même excitation : E_p = 1 µJ, τ_p = 110 fs, θ = 26°. Une section selon l'axe horizontal y est montrée en fonction du délai τ et une section dans le plan (x, y) est présentée à gauche à τ = 1 ns (correspondant à la ligne en pointillé).

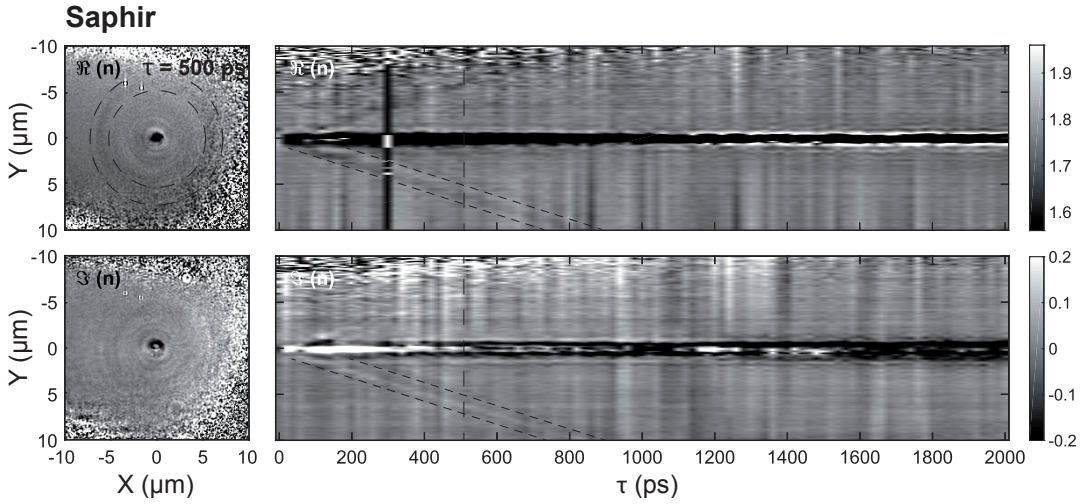

FIGURE 3.9 – Mise en évidence d'une onde mécanique dans le saphir, par modification du contraste de visualisation. Le front de l'onde est cerné de lignes pointillées pour plus de lisibilité. Cette onde se propage à plus grande vitesse que celles dans la silice fondue ou le borosilicate.

nuer bien au delà de notre plage de délais accessible et rentrer en compatibilité avec le modèle de micro-explosion lente [120]. En comparant par ombrographie l'état à $\tau = 2$ ns et $\tau = \infty$ (imagerie plusieurs secondes après l'impulsion pompe, non-présentée ici), nous remarquons que la dynamique de formation du nanocanal n'est pas terminée à $\tau = 2$ ns.

Le cas du saphir est particulièrement intéressant : l'essentiel des modifications d'indice, très intenses et localisées, se produit dans les premières 20 ps ce qui est compatible avec l'hypothèse d'une micro-explosion rapide [113–115]. La rapidité de la modification d'indice fait penser à une transition de phase ultrarapide [210] liée au rétrécissement de la bande interdite pour les plasmas densément peuplés [156].

3.2.2/ GRANDEURS D'INTÉRÊT

Bien que la reconstruction de la distribution d'indice possède un bruit important et quelques défauts encore non-résolus, l'information recueillie ici est précieuse et nous permet d'ores et déjà d'établir des hypothèses sur les phénomènes à l'œuvre.

3.2.2.1/ CARACTÉRISTIQUES DU PLASMA

Les valeurs exactes d'indice relevées par notre méthode de reconstruction ne semblent pas encore suffisamment précises pour obtenir une estimation pertinente de la densité électronique ρ dans chaque cas. Cependant si quantitativement la valeur d'indice est imprécise, sa distribution spatiale est mesurable et une tendance peut déjà être observée : dans le plan (x, y) à $\tau = 400$ fs, on peut voir que le profil d'indice est similaire pour les trois milieux considérés. Nous observons une diminution de l'indice réel au centre, cernée d'une zone d'indice plus fort. La décroissance de l'indice observée à partir de ≈ 200 fs est compatible avec l'approximation au premier ordre de l'effet d'une densité de plasma ρ sur l'indice de réfraction [6] : $\Delta n = -\rho/2\rho_{cr}$. Si l'on en croit les valeurs d'indices

affectées à chacun des cas, la densité moyenne atteinte sur la période [200, 1000] fs serait respectivement de 0,8±0,2ρ_{cr} pour la silice fondue, 0,4±0,2ρ_{cr} pour le borosilicate et 0,6±0,2ρ_{cr} pour le saphir (ρ_{cr} étant donné pour la longueur d'onde pompe). Sous l'hypothèse que notre méthode d'extraction est quantitativement correcte, nous avons alors trois plasmas en régime sous-critique, approchant toutefois de la densité critique.

Il est à remarquer que la variation de l'indice sur le pourtour est compatible pour le cas des verres avec la présence d'excitons piégés (*self-trapped excitons*, STE) [211]. Dans le cas du saphir, les STEs ne jouent qu'un rôle limité du fait d'un piégeage peu important [31]. Pour la silice fondue et le borosilicate, l'énergie du premier niveau excité des STEs se trouve à ≈ 4,2 eV, et la présence de STE tend à faire augmenter localement l'indice dans le cas où la pulsation excitonique ω_{STE} est supérieure à celle de l'impulsion laser [31] :

$$\Delta n_{STE} = \frac{N_{STE} e^2}{2 n_0 m \varepsilon_0 \left(\omega_{STE}^2 - \omega^2\right)} \tag{3.25}$$

où N_{STE} est la densité de STE. Le temps de vie des excitons est typiquement de l'ordre de 10-100 ps et leur temps de formation est inférieur à 300 fs [212], ce qui peut alors correspondre à nos observations. Aux niveaux d'énergie de l'impulsion pompe, la variation d'indice attendue se trouve cependant davantage autour de 10^{-4} ($N_{STE} \approx 10^{18}$) [154] que des 10^{-3} observés. Pour le moment, nous ne pouvons toutefois pas être plus quantitatifs en terme de population des STEs et apporter une réelle preuve de leur présence, mais un intérêt certain leur sera accordé dans les prochaines campagnes de mesure.

Se pose alors une question quant à la mesure d'un diamètre typique pour le plasma : sur quel critère est-il possible de se baser pour établir une telle mesure ? Nous établissons trois définitions, pour trois critères établis sur les cartographies d'indice dans le plan (x, y) à un instant donné. On définit le diamètre du plasma $Ø_{def1}$ comme celui de la zone de transition entre la zone d'indice fort et la zone d'indice faible vue sur la partie réelle de l'indice. $Ø_{def2}$ est obtenu en prenant ce même critère pour la cartographie de partie imaginaire. Enfin $Ø_{def3}$ englobe la totalité de la zone affectée par le plasma sur les deux parties réelle et imaginaire. Ces trois définitions sont illustrées en figure 3.10, pour l'indice mesuré dans la silice fondue (les échelles d'indice ont été étirées pour une meilleure visualisation).

	Silice fondue	Borosilicate	Saphir	$Ø_{Bessel}$
$Ø_{def1}$	0,7±0,1	0,85±0,1	0,85±0,1	FWHM : 0,66
$Ø_{def2}$	1,3±0,2	1,8±0,2	1,5±0,2	Premier zéro : 1,41
$Ø_{def3}$	2,2±0,2	3,2±0,2	2,4±0,2	Deuxième zéro : 3,23

TABLE 3.1 – Comparaison des diamètres mesurés sur les cartographies d'indice avec les dimensions typiques du faisceau de Bessel d'excitation. Toutes dimensions données en microns.

L'ensemble des diamètres mesurés dans les trois milieux est récapitulé dans le tableau 3.1 et comparé avec les dimensions transverses typiques du faisceau de Bessel d'excitation. Il ressort de ces mesures que la majorité des modifications d'indice se produit bien au cœur du lobe central. Une seconde zone affectée existe entre le premier et le second zéro d'intensité du faisceau de Bessel et correspond alors au premier lobe

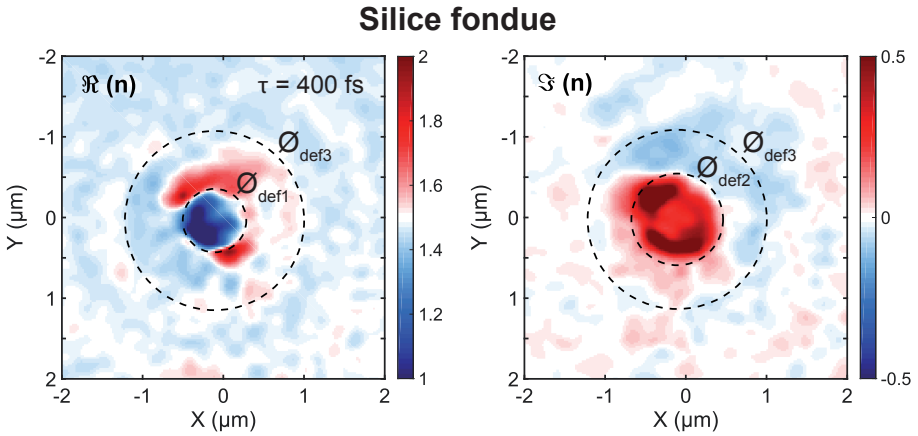

FIGURE 3.10 – Définitions des différents diamètres $Ø_{def1,2,3}$, pris sur les cartographies d'indice à τ = 400 fs.

périphérique. L'extension totale des perturbations atteint le second zéro de la fonction de Bessel, quoique ces perturbations soient faibles dans cette dernière zone.

3.2.2.2/ CÉLÉRITÉ DES ONDES MÉCANIQUES

L'observation d'une onde mécanique circulaire dans le plan d'imagerie permet de témoigner de la relaxation mécanique du dépôt d'énergie par impulsion laser femtoseconde. Nous mesurons le diamètre du front d'onde circulaire de nos différents ondes mécaniques visibles en fonction du délai τ et nous en déduisons la célérité de ces ondes dans le milieu. Nous remarquons qu'à proximité directe du centre r = 0, l'expansion de l'onde ne se produit pas à vitesse constante : l'onde décélère, avant de rejoindre son régime de propagation linéaire et à célérité constante. Toutes les mesures de célérité sont alors réalisées à partir d'un rayon $r > 2$ µm.

Dans la silice fondue, l'onde se développe à partir du délai τ = 40 ps environ et progresse ensuite à une célérité transverse moyenne de 6,5±0,3 km/s. Un second front existe et se propage avec la même célérité et un retard sur sa voisine constant de 200±20 ps. Ces deux ondes mécaniques perdent en contraste d'indice au long de la propagation, comme le prévoit la décroissance de l'intensité en $1/r$ pour une onde cylindrique. Pour le cas du borosilicate, 3 des 4 fronts d'onde observés se propagent à des vitesses semblables : 6,5±0,4 km/s. En revanche le premier front observé à partir de 60 ps ne possède pas une célérité constante et s'évanouit dans le bruit au delà de 400 ps. Sur la période [200, 400] ps, la célérité moyenne de cette onde est mesurée à 10±2 km/s. Dans le saphir, la seule onde visible se propage à 11,7±0,7 km/s.

Pour comparaison, la vitesse d'une onde acoustique de compression dans la silice fondue est connue et tabulée à 5968 m/s et celle d'une onde transverse (cisaillement) à 3764 m/s [213]. Pour des verres de type borosilicate, ces vitesses sont plus faibles : respectivement 5640 et 3280 m/s. Pour le saphir, ces vitesses sont beaucoup plus élevées du fait de sa structure cristalline et de sa grande rigidité et atteignent 11,16 km/s (coupe C) [214]. L'ensemble des valeurs expérimentales relevées par nos moyens et des célérités de référence issues de la littérature est comparé dans le tableau 3.2.

Les ondes observées grâce à notre mesure d'indice peuvent être raisonnablement as-

Matériau	Onde n°1	n°2	n°3	n°4	$c_{compression}$	$c_{cisaillement}$
Silice fondue	6,5±0,3	6,1±0,4	/	/	5,968 (1)	3,764 (1)
Borosilicate	10±2	6,2±0,2	6,9±0,2	6,5±0,2	5,64 (1)	3,28 (1)
Saphir (coupe C)	11,7±0,7	/	/	/	11,16 (2)	6,85 (3)

TABLE 3.2 – Tableau récapitulatif des célérités transverses dans le plan (x, y) des ondes mécaniques observés sur la plage de délai [0, 2] ps dans les trois matériaux d'étude. Toutes célérités données en km/s. Les célérités de référence en compression $c_{compression}$ et en cisaillement $c_{cisaillement}$ proviennent : (1) de [213], (2) de [214] et (3) de [215].

sociées à des ondes de choc en compression, se propageant légèrement au-delà de la vitesse du son sous forme d'ondes cylindriques (dont l'expansion se produit transversalement à l'axe du faisceau de Bessel). La présence d'ondes supersoniques n'est pas en soit une surprise, plusieurs études ayant déjà montré leur existence dans le verre [145, 152, 154]. Bergner *et al.* ont par exemple mesuré une célérité de 6,0±0,6 km/s dans le verre (Corning Gorilla glass 2318, $c_{compression} \approx$ 5,5 km/s) sous une excitation spatialement gaussienne [154]. Wang *et al.* rapportent dans la silice fondue des célérités comprises entre 5,9 et 7,1 km/s sous une excitation en forme de faisceau de Bessel [145]. Ces deux études sont en accord avec les valeurs déterminées dans notre travail.

De plus amples mesures permettront dans le futur d'observer une éventuelle dépendance de la célérité de ces ondes avec l'énergie par impulsion à l'origine de leur formation, Babin *et al.* ayant déjà mis par exemple en évidence une loi du type $c = \sqrt[4]{\xi E_p}$ dans un polymère (PMMA) [208].

3.3/ DENSITÉ DU PLASMA GÉNÉRÉ

L'ensemble de la première partie de ce chapitre repose sur la mesure de l'indice de réfraction lié à la densité de plasma locale. Nous travaillons à l'aide d'une équation faisant l'hypothèse d'un plasma de densité sub-critique à la longueur d'onde sonde : au-delà de la densité critique, l'équation de Helmholtz utilisée n'est localement plus valide pour le champ collecté après l'échantillon. Nous l'avons vu, cette méthode permet cependant de bons résultats grâce au fait que la densité du plasma peut franchir la densité critique pour l'impulsion pompe sans pour autant atteindre celle pour l'impulsion sonde ($\rho_{cr}(\lambda_{sonde}) = 4 \times \rho_{cr}(\lambda_{pompe})$).

Nous avons établi la preuve que les dimensions spatiales du plasma peuvent être estimées grâce à la technique pompe-sonde interférométrique mais il reste à présent une problématique quant à une estimation plus précise de la densité atteinte : franchit-elle la densité critique pour la longueur d'onde pompe ? L'établissement d'un modèle d'ablation laser femtoseconde pour les faisceaux de Bessel repose en grande partie sur la quantité d'énergie pouvant être transférée au plasma par l'impulsion qui en est à l'origine : la nature métallique, et donc réflective (*plasma shielding*), d'un plasma sur-critique [137, 216, 217] lui confère des propriétés très différentes d'un plasma sous-critique qui tend au contraire à absorber fortement [4, 26].

Cette partie présente donc deux études complémentaires à l'expérience pompe-sonde, afin de fournir des éléments de réponse sur la densité du plasma généré et le franchis-

sement (ou non) de la densité critique à la longueur d'onde d'excitation.

Le premier test interroge directement la nature réflective du plasma formé par un faisceau de Bessel. Nous étudions les coefficients de réflexion du plasma pour différentes énergies, en décomposant sur la base des fonctions de Bessel un faisceau de Bessel filtré spatialement dans l'espace de Fourier. Pour une condition de filtrage donnée, nous comparons l'intensité collectée après l'échantillon avec un modèle numérique de réflexion sur un milieu homogène multicouche. Connaissant grâce à l'expérience pompe-sonde les dimensions transverses du plasma généré, nous retrouvons la densité du plasma atteinte pour chaque condition d'illumination.

Le second test observe les propriétés non-linéaires du plasma, qui se comporte comme un milieu χ^2 et permet la génération de seconde harmonique (SHG) dans un milieu isotrope (verre par exemple) qui par propriétés de symétrie n'autorise pas hors perturbation ce type d'interaction. La SHG auto-induite par l'impulsion pompe nous renseigne sur l'état du plasma formé et d'en déduire sa densité, pour différentes énergies, angles coniques et durées d'impulsions. Nous réalisons à notre connaissance la première preuve expérimentale de génération de seconde harmonique sur un plasma généré par laser dans un solide.

3.3.1/ RÉFLEXION/RÉFRACTION/TRANSMISSION CONIQUE SUR LE PLASMA

En régime sous-critique, un plasma modifie la permittivité d'un milieu (voir partie 3.1.1.2) en faisant baisser la partie réelle de l'indice de réfraction et en augmentant sa partie imaginaire. La conséquence est qu'un plasma dense tend à absorber davantage une onde incidente qu'un plasma moins dense. En atteignant la densité critique à une longueur d'onde donnée, une singularité est observée : le milieu est totalement ionisé et se comporte localement comme un métal, réfléchissant à la longueur d'onde considérée.

Nous simulons la situation suivante : un faisceau de Bessel créé dans un milieu un plasma et nous étudions le profil d'intensité collecté dans l'espace de Fourier après propagation autour du plasma. Afin de mettre en évidence les effets de propagation sur le plasma, nous brisons la symétrie cylindrique de ce faisceau de Bessel par une opération de filtrage spatial dans l'espace de Fourier, en bloquant une portion des fréquences spatiales permettant de générer le faisceau de Bessel dans l'échantillon. La conséquence de ce filtrage est l'introduction de nouvelles fréquences spatiales, qu'il est possible de décomposer comme une série de fonctions orthogonales. Le faisceau de Bessel filtré se comporte alors comme une décomposition sur la base des fonctions de Bessel, possédant chacune un coefficient de réflexion différent sur le plasma.

3.3.1.1/ PRINCIPE DE L'EXPÉRIENCE

Un faisceau de Bessel étant à symétrie de révolution, l'observation de l'auto-réflexion d'un tel faisceau sur un plasma, supposé lui aussi à symétrie cylindrique, n'a que peu d'intérêt puisqu'aucun motif particulier n'est alors attendu en champ lointain. Il nous faut alors briser la symétrie cylindrique du faisceau incident, afin d'observer l'allure de ce même faisceau après réflexion.

À partir d'un faisceau de Bessel généré par un SLM, nous réalisons une opération de filtrage spatial dans l'espace de Fourier, de manière à éliminer une part de l'anneau

obtenu dans ce plasma. Nous utilisons une lame métallique mince, occultant une partie de l'anneau de Bessel dans le plan de Fourier. Le spectre du faisceau de Bessel incident sur l'échantillon prend alors la forme d'un "C", et nous mesurons le profil du spectre spatial du faisceau après sa propagation sur le plasma qu'il induit (figure 3.11)

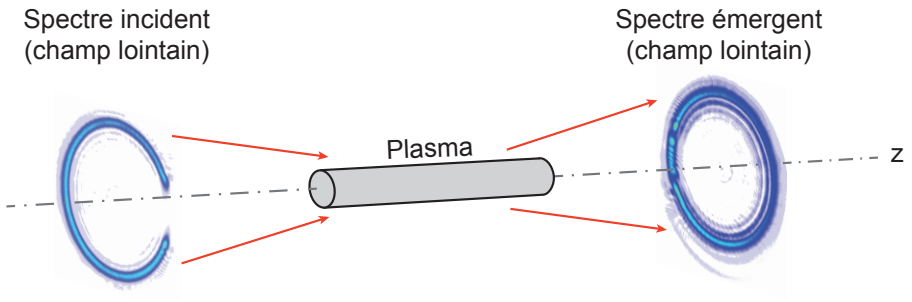

FIGURE 3.11 – Principe de l'expérience de réflexion sur le plasma : nous mesurons le spectre spatial du faisceau de Bessel après propagation sur le plasma induit, pour un spectre incident dont la symétrie cylindrique a été brisée (forme en "C").

Le filtrage spatial étant léger, le faisceau formé au sein de l'échantillon possède les mêmes propriétés que le faisceaux de Bessel originel, quoique le lobe centrale ne soit plus tout à fait circulaire (voir figures 3.12 et 3.15).

3.3.1.2/ DÉCOMPOSITION EN SÉRIE DE FONCTIONS DE BESSEL

Du fait de la géométrie cylindrique du problème (hors filtrage), nous travaillons pour la simulation sur la base des fonctions de Bessel. Nous cherchons donc les poids relatifs α_n des n ordres des fonctions de Bessel mises en jeu pour décrire numériquement le faisceau formé après filtrage.

Le principe de la simulation est d'utiliser cette décomposition et de réaliser le calcul de réflexion/transmission pour chaque mode pris individuellement (figure 3.13). Ce calcul est basé sur la résolution des équations de Maxwell, et le faisceau émergeant est obtenu par sommation sur l'ensemble des ordres transmis.

3.3.1.3/ MODÉLISATION PAR APPROCHE MULTI-COUCHE

Nous l'avons vu dans la première partie de ce chapitre, l'étude de la propagation dans un milieu inhomogène présentant de forts gradients de permittivité n'est pas un problème simple. Nous raisonnons dans ce travail avec la même approximation formulée en section 3.1.1.4 : nous négligeons les gradients de permittivité localement afin de calculer le champ propagé sous la forme d'une équation de Helmholtz semi-homogène (équation 3.9). La retranscription du profil d'indice induit par le plasma se fait alors sous forme d'une fonction continue par morceaux, représentant par paliers un profil d'indice qu'on suppose linéaire. Ce profil linéaire est lors défini par deux paramètres : ρ_{plasma}, la densité au centre du plasma (à $r = 0$) et r_{plasma} qui représente le rayon pour lequel est atteint $\rho = 0$ (pied du plasma).

Nous utilisons un modèle à vingt couches, ramenant chaque couche à une épaisseur inférieure à $\lambda_p/8$ (le plasma simulé n'excède jamais un rayon de 2 µm) et assurant un

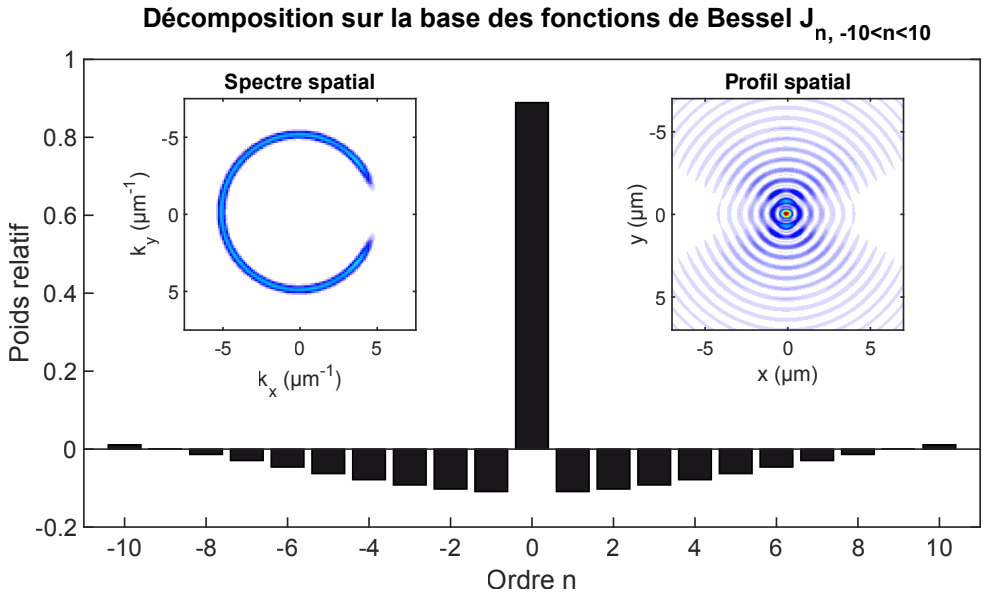

FIGURE 3.12 – Exemple de décomposition de l'anneau dans l'espace de Fourier sur la base des fonctions de Bessel d'ordre 0 à ±10. On remarque que l'ordre 0 prime, comme on peut le voir après transformée de Fourier : le faisceau formé possède globalement l'allure d'un faisceau de Bessel J_0 et conduit donc probablement à la formation d'un plasma localisé dans le lobe central.

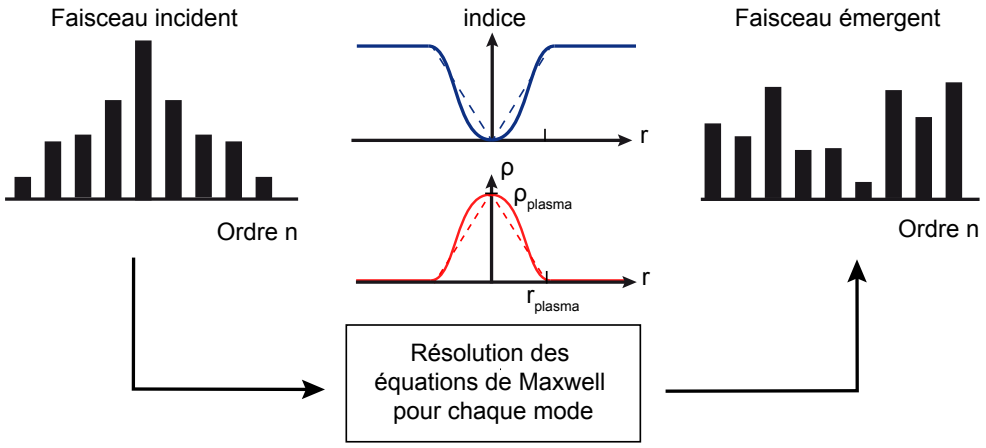

FIGURE 3.13 – Principe du calcul de réflexion/transmission sur une collection d'ordres de Bessel, avec résolution des équations de Maxwell pour chaque ordre pris individuellement. Le faisceau émergeant est obtenu par sommation sur l'ensemble des ordres transmis.

échantillonnage spatial suffisant.

Nous obtenons alors dans un milieu homogène une perturbation à géométrie cylindrique, sous forme d'une successions de couches, chacune uniforme, homogène et dont la permittivité correspond à une valeur moyennée sur l'épaisseur de chaque couche. Nous étudions les coefficients de réfraction, réflexion et transmission en calculant les équations de propagation dans chaque milieu, en tenant compte des conditions de continuités à chaque interface. L'approche, dont le développement mathématique ne sera pas détaillé

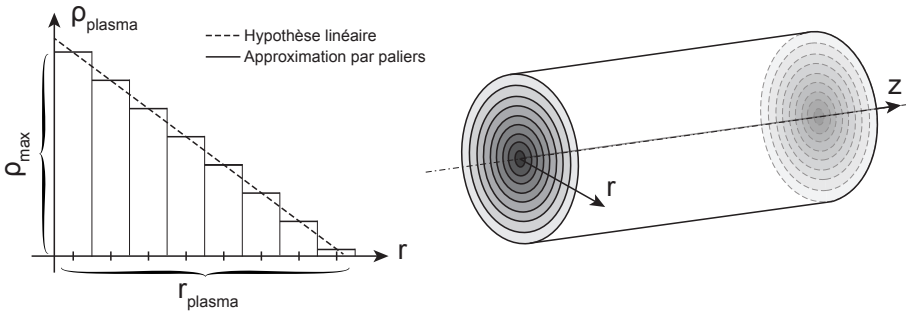

FIGURE 3.14 – Approximation d'un profil de densité linéaire par une série finie de couches, possédant chacune une permittivité moyennée sur l'épaisseur de chaque couche.

ici, se rapporte à un calcul de matrices de transmission/réflexion, établies pour chaque ordre permettant la décomposition du faisceau de Bessel.

Le paramètre r_{plasma} (ou $Ø_{plasma} = 2r_{plasma}$) permet d'ajuster la dimension spatiale du plasma, en donnant le rayon (le diamètre) au niveau de la couche la plus extérieure du modèle. Il correspond au pied de la rampe approximant le profil radial du plasma. La variable ρ_{max} correspond à la densité atteinte au centre du plasma : c'est donc la densité maximale accessible dans cette situation en théorie.

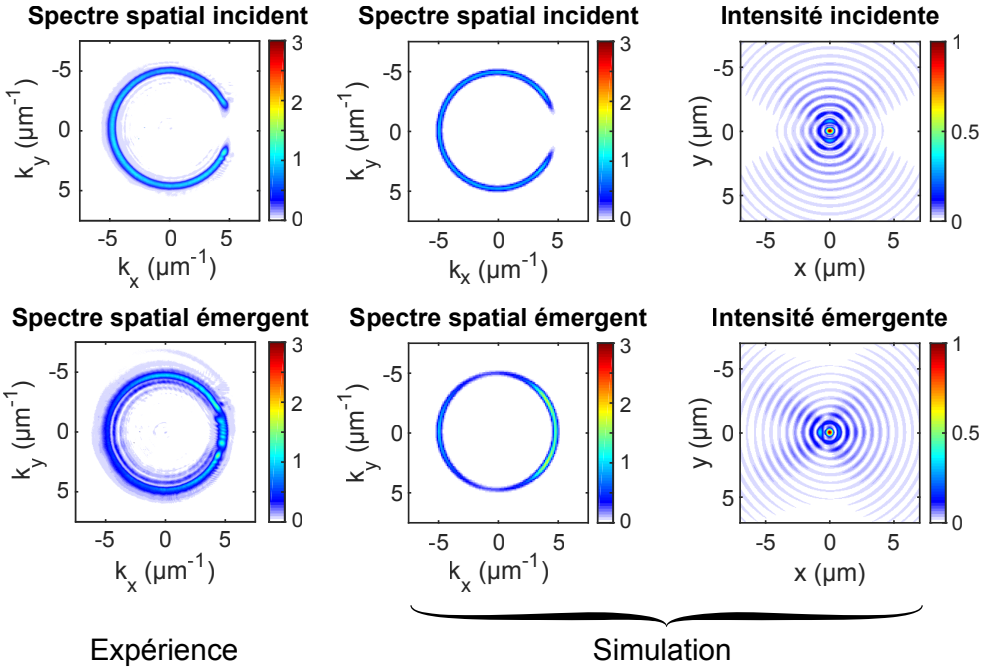

FIGURE 3.15 – Comparaison du modèle simulé, tronqué sur la base des fonctions de Bessel d'ordre 0 à ±10, avec le cas expérimental pour un couple de paramètres $(Ø_{plasma}, \rho_{plasma})$ donné.

Expérimentalement, nous travaillons dans la silice fondue, à une énergie par impulsion E_p = 1 µJ (τ_p = 110 fs) et pour un angle conique de 26°. Le faisceau est intégralement inséré dans le volume de l'échantillon (pas de croisement de la face de sortie ou d'entrée).

Nous remarquons que le profil expérimental possède un spectre plus riche après

réflexion/transmission sur le plasma : l'anneau de Bessel s'élargit et des anneaux secondaires sont même visibles. La diffraction sur le masque engendre quelques rebonds d'intensité autours de ses bord. Après réflexion/transmission, la partie masquée est à présent "remplie" par le profil d'intensité, et une sur-intensité existe même à ce même endroit.

3.3.1.4/ APPROCHE EMPIRIQUE

L'inconnue portant à la fois sur le diamètre du plasma et la densité atteinte au cœur du plasma nous oblige à procéder par tâtonnement pour retrouver un comportement similaire entre simulation et expérience. À partir des trois diamètres typiques établis grâce à l'imagerie pompe-sonde, nous définissons trois positions probables du pied de la rampe de plasma, toutes trois rapportées au profil d'intensité du faisceau de Bessel. Nous considérons alors les diamètres de la fonction $|J_0(r)|^2$, prise à mi-hauteur, au premier et au deuxième zéro de la fonction. En augmentant progressivement la densité maximale atteinte, nous cherchons à identifier empiriquement le couple $(Ø_{plasma}, \rho_{plasma})$ permettant de retrouver un profil spectral similaire à celui observé expérimentalement sur la figure 3.15.

L'ensemble des spectres simulés est représenté en figure 3.16, et est comparé avec le profil expérimental. Le profil correspondant à notre image expérimentale possède un remplissage en intensité de la zone originellement masquée et même une sur-intensité autour de cette région.

Nous encadrons de vert les couples $(Ø_{plasma}, \rho_{plasma})$ qui nous semblent satisfaire à la correspondance avec le profil expérimental. Nous remarquons que pour un plasma dont le pied se trouve au premier zéro de la fonction de Bessel, il est difficile de distinguer une éventuelle évolution avec l'augmentation de la densité dès lors que ρ_{max} excède ρ_{cr}. Par correspondance directe, le facteur lié à la sur-intensité nous indique que ρ_{max} est située à ρ_{cr} au minimum.

Pour le cas d'un plasma large (pied du plasma situé au niveau de premier zéro du faisceau de Bessel), la correspondance optimale se situe vers $1/2\rho_{cr}$: au delà, la zone de sur-intensité se divise en deux, ce qui n'est pas le cas expérimentalement. Enfin le cas d'un plasma fortement confiné (dans le diamètre à mi-hauteur du faisceau de Bessel), aucun cas ne donne une correspondance satisfaisante.

Nous fournissons ici un premier jalon montrant que la densité du plasma généré par un faisceau de Bessel est de l'ordre de la densité critique à E_p = 1 µJ, τ_p = 110 fs et pour un angle de 26° dans l'air.

3.3.2/ GÉNÉRATION DE SECONDE HARMONIQUE SUR LE PLASMA

La génération de seconde harmonique n'est théoriquement limitée qu'aux milieux χ^2, c'est-à-dire ne présentant pas symétrie centrale. Cette condition est notamment atteinte dans certaines cristaux, mais également dans tous les milieux centro-symétriques où une brisure de symétrie a été induite. Sous l'action d'un champ statique [218], d'une contrainte mécanique [219], à proximité d'une surface [220] ou d'une nanoparticule [221, 222], le milieu peut localement se comporter comme un milieu χ^2.

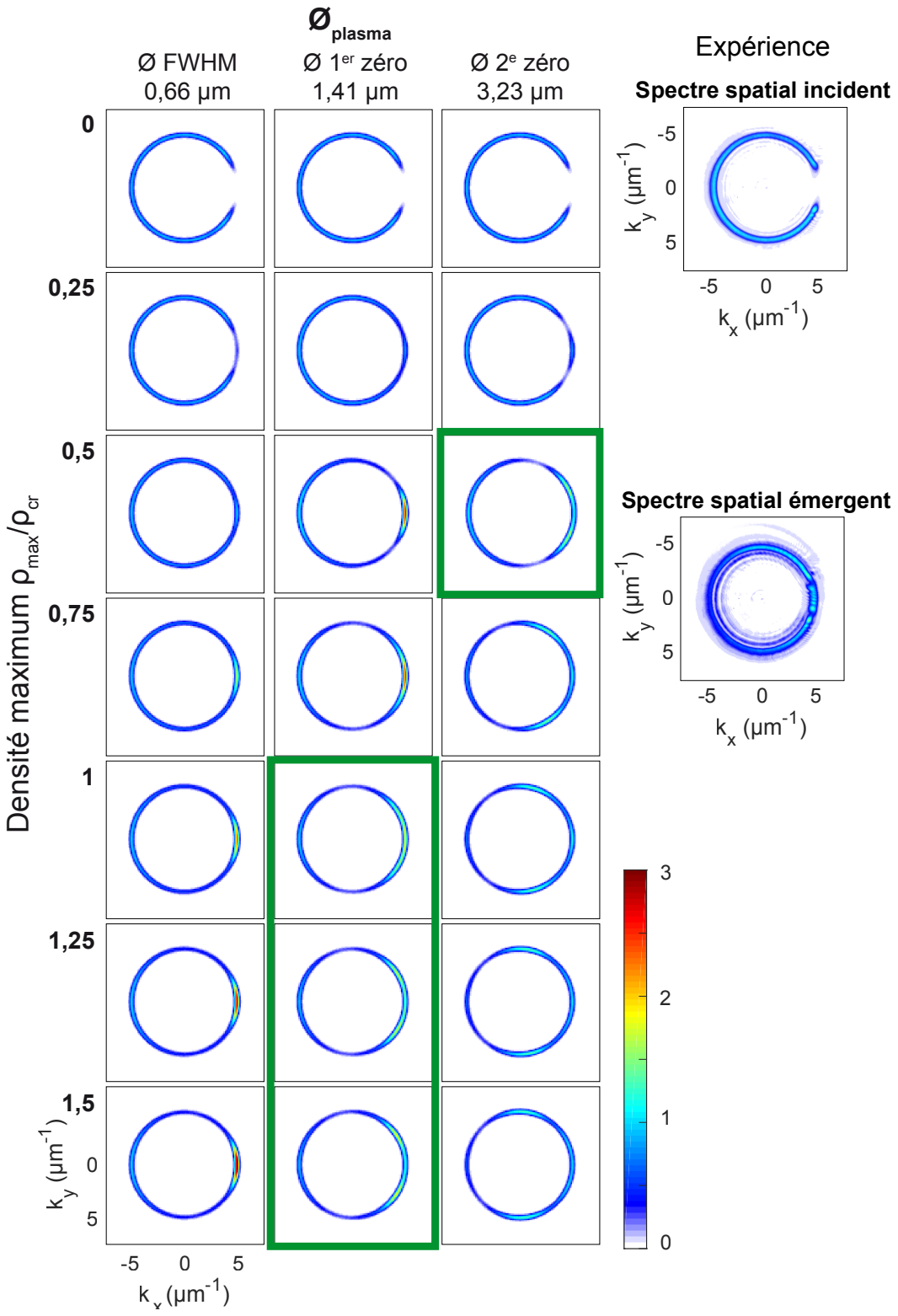

FIGURE 3.16 – Comparaison des spectres spatiaux émergents simulés avec le spectre expérimental, supposant trois diamètres du plasma à la base (approximation d'une rampe linéaire de densité) et différentes densités maximum. Les graphes cernés de vert donnent une correspondance satisfaisante à la figure expérimentale observée.

Ceci est donc également vrai à l'interface entre un milieu et un plasma généré en son sein, ou même au cœur du plasma lorsque les charges sont dissociées et permettent donc l'existence d'un moment dipolaire [223] pouvant être à l'origine de génération de seconde harmonique (SHG). La SHG sur un plasma n'est pas en soit une nouveauté [224–226], mais cette génération se limite à des interactions de surface et le plus souvent sur des métaux. La mise en évidence de SHG à l'intérieur d'un solide par un plasma généré par laser est ici une nouveauté par rapport à l'état de l'art et trouve ici une utilité pour la caractérisation du plasma que l'on cherche à mesurer.

3.3.2.1/ IMAGERIE DU SIGNAL DE SHG

Théoriquement, l'interaction non-linéaire de deux photons pompes à ω_p dans un milieu χ^2 ne possède qu'une solution propagative (l'autre solution est la rectification ou redressement optique, effet complémentaire de l'effet électro-optique) réalisant à la fois l'accord de phase $\vec{k_1} + \vec{k_2} = k_{\vec{SHG}}$ et la conservation de l'énergie $\omega_p + \omega_p = \omega_{SHG}$.

Le faisceau de Bessel est placé dans le volume de l'échantillon (il ne croise pas de dioptre air/verre) et nous nous plaçons dans une configuration d'imagerie sans onde sonde. Nous effectuons la mesure pour des énergies comprises entre 0,5 et 2 µJ, dans du saphir et de la silice fondue. Afin d'éviter le recouvrement tir à tir des impulsions, nous déplaçons continument l'échantillon pendant la durée de l'exposition sur la caméra (v = 1 mm/s). Le signal à collecter est faible : nous exposons alors durant 0,5 s et augmentons le gain de la caméra à +20 dB.

En faisant l'hypothèse que l'émission de seconde harmonique s'effectue sur l'ensemble de la longueur du barreau de plasma généré par un faisceau de Bessel, il apparaît évident que l'imagerie dans l'espace direct n'est pas la meilleure solution : nous préférons travailler dans l'espace de Fourier afin d'intégrer le signal sur l'ensemble de la propagation. L'imagerie dans l'espace des fréquences nous renseigne également sur les fréquences spatiales des ondes optiques collectées.

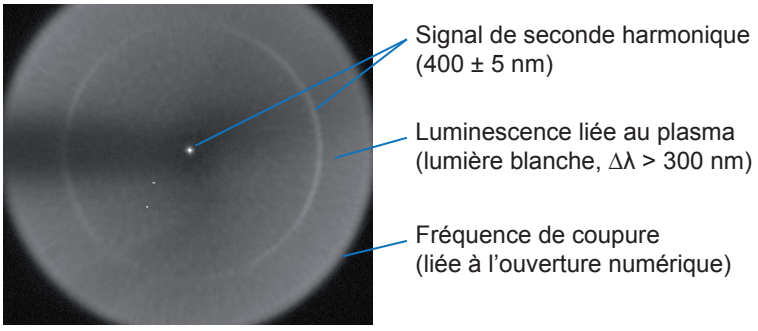

FIGURE 3.17 – Identification des différentes contributions mesurées par la caméra lors de la mesure du signal de seconde harmonique. L'ombre horizontale visible à gauche du point central correspond aux précédents dommages induits.

Expérimentalement nous collectons un large spectre de contributions (figure 3.17), et nous cherchons à distinguer ces contributions les unes des autres. La longueur d'onde pompe est filtrée par un couple miroir dichroïque/filtre passe-bande, comme dans le cas de l'imagerie pompe-sonde. L'utilisation d'un filtre autour de 400 nm à large bande ($\Delta\lambda$ = 100 nm) puis d'un autre à bande étroite ($\Delta\lambda$ = 10 nm) nous permet de dissocier en grande

partie les phénomènes à émission de spectre large (luminescence du plasma, radiation de type corps noir...) de celle de génération de seconde harmonique autour de 400 nm. Nous vérifions ainsi que le signal collecté respecte bien la relation $\omega_p + \omega_p = \omega_{SHG}$ en se trouvant à proximité directe de $\lambda_p/2$ = 400 nm. Ceci nous permet d'affirmer que le signal obtenu n'est pas une simple émission conique, qui présente quant à elle une émission le plus souvent large bande [227–230].

Nous remarquons que la SHG existe à la fois dans la silice fondue et dans le saphir. Spectralement le signal de SHG se présente spatialement sous la forme d'un anneau dans l'espace de Fourier et semble donc prendre dans l'espace direct la forme d'un faisceau de Bessel. L'anneau dans l'espace de Fourier présente deux lobes plus intenses, orientés selon l'axe de la polarisation pompe et la rotation de la polarisation de la pompe entraine la rotation de ces deux lobes. Il est à noter que le signal de seconde harmonique disparaît lorsqu'on étire l'impulsion pompe : la SHG est noyée dans le fond continu de luminescence pour τ_p = 5 ps.

3.3.2.2/ ANGLE D'ÉMISSION DE SHG

En réalisant successivement une observation dans l'espace de Fourier à 800 nm et à 400 nm sur la même caméra, nous nous apercevons que le signal de SHG est émis pour un angle conique proche de celui d'excitation. Cependant, le signal de seconde harmonique est en fait émis pour un angle conique $\theta_{2\omega}$ plus élevé que θ_ω.

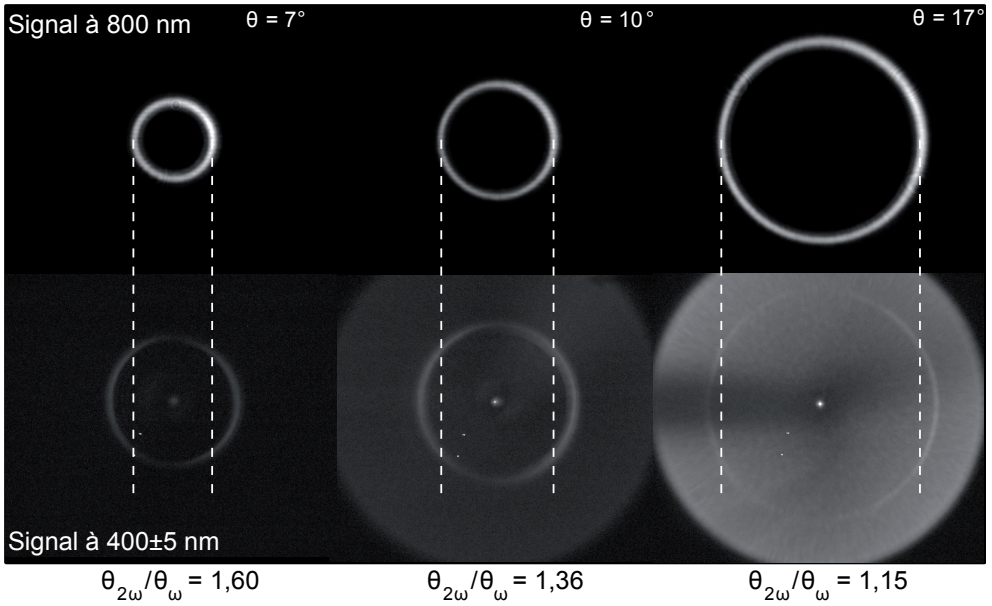

FIGURE 3.18 – Comparaison des angles coniques d'excitation à 800 nm (en haut) et d'émission à 400 nm (en bas), pour différents angles coniques du faisceau de Bessel θ_ω. Le milieu d'interaction est la silice fondue. Le rapport entre $\theta = \theta_\omega$ et $\theta_{SHG} = \theta_{2\omega}$ est donné pour information (θ donné dans le milieu).

La présence d'un couplage photon-phonon par création de plasmon à la surface du plasma permettrait de fournir une explication possible quant à la différence de fréquence spatiale observée [231]. Si la mesure d'un plasmon de surface reste en pratique assez simple à la surface d'un métal, la complexité de la géométrie cylindrique du plasma ainsi

que la génération de plasma dans le volume rendent difficile l'estimation de la contribution des plasmons dans le processus de SHG se produisant ici. Nous ne pouvons ici que constater la différence d'angle conique.

Nous notons également la présence d'un signal sur l'axe optique (k_r = 0), dont l'origine exacte n'a pas encore trouvé d'explication. L'état de polarisation de cette contribution est identique à celle du faisceau d'excitation. Il pourrait s'agir d'un couplage entre deux photons satisfaisant la relation $k_{r1} + k_{r2} = 0$, bien que l'accord de phase ne soit pas totalement respecté pour un signal de pure SHG.

3.3.2.3/ DOUBLE IMPULSION POMPE

Afin de mettre en évidence si cet effet est cohérent ou non, nous installons dans notre expérience un second bras au chemin optique pompe. Réplique exacte du premier, celui-ci dispose de son propre SLM et permet à la fois une mise en forme spatiale indépendante, une énergie contrôlable et un délai ajustable relativement au premier chemin optique. Nous obtenons alors la possibilité de générer un second faisceau de Bessel intégralement flexible, et superposé spatialement au premier. La superposition des deux faisceaux de Bessel est effective à 50 nm près et l'angle de déviation les séparant est inférieur à 0,8 mrad au niveau de l'échantillon.

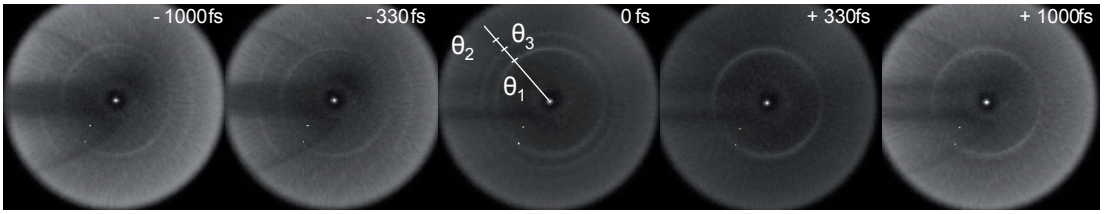

FIGURE 3.19 – Spectre d'émission de la SHG pour différents délais τ_{1-2} dans la silice fondue. Le délai est donné tel que $\tau_{1-2} > 0$ lorsque l'impulsion 2 arrive après l'impulsion 1. La trace sombre horizontale correspond à l'ombre des précédents tirs. Paramètres : $E_{p,1}$ = 1 µJ, $E_{p,2}$ = 0,5 µJ, θ_1 = 10° et θ_2 = 17° (dans le milieu).

Nous distinguons les deux contributions grâce à un angle conique différent pour chaque faisceau de Bessel (resp. θ_1 et θ_2). L'observation se fait une nouvelle fois à 400 nm et dans l'espace de Fourier. Comme précédemment, chaque faisceau de Bessel crée un signal de SHG à un angle conique proche de celui de l'angle conique $\theta_{1,2}$. Sur la figure 3.19, l'impulsion 1 possède un angle conique plus faible que l'impulsion 2 et crée l'anneau intérieur de SHG ; l'anneau extérieur, bien visible par exemple à τ_{1-2} = -1000 fs, correspond à l'impulsion 2.

Nous voyons que lorsque le délai entre pompes τ_{1-2} est faible (superposition temporelle des impulsions), un signal de SHG apparaît à l'angle moitié des deux contributions $\theta_{SHG,1}$ et $\theta_{SHG,2}$, de façon similaire à celui d'un signal de corrélation dans un autocorrélateur SHG. Ce signal est la preuve qu'il existe une interaction complexe avec le plasma, liée à la présence de deux angles d'excitation. Pour de grands délais (jusqu'à 1 ps) les deux contributions $\theta_{SHG,1}$ et $\theta_{SHG,2}$ existent, quel que soit le signe du délai (impulsion 1 arrivant avant/après l'impulsion 2) et sans couplage mutuel : le phénomène de SHG est donc ici non-cohérent. En revanche, l'efficacité de l'anneau extérieur lié à l'impulsion 2

est bien plus faible pour les délais positifs [4] : contrairement à ce qu'on aurait pu attendre, un plasma pré-existant créé par l'impulsion 1 précédemment arrivée n'améliore pas significativement la génération de seconde harmonique de la seconde impulsion. On peut remarquer que le fond continu est plus important pour les grands délais, et provient d'une plus forte luminescence du plasma. Cette luminescence est à large spectre (vue à l'œil comme un continuum sur l'ensemble du spectre visible), dont une partie est émise autour de 400 nm.

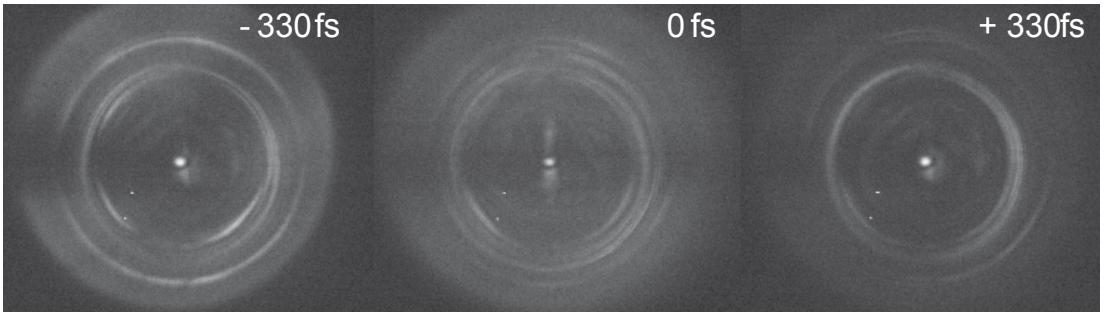

FIGURE 3.20 – Spectre d'émission de la SHG pour différents délais τ_{1-2} dans la silice fondue. Paramètres : $E_{p,1}$ = 2 µJ, $E_{p,2}$ = 1 µJ, θ_1 = 10° et θ_2 = 17° (dans le milieu).

Lorsque nous augmentons l'énergie ($E_{P,1}$ = 2 µJ et $E_{P,2}$ = 1 µJ), le régime d'interaction semble devenir encore plus complexe à interpréter comme le montre la figure 3.20. Le spectre d'émission possède un élargissement notable et de nouvelles composantes spectrales font leur apparition : les anneaux de Bessel se dédoublent et perdent en homogénéité sur leur pourtour. Pour τ_{1-2} = -330 fs, l'interaction de la pompe 2 sur le plasma préformé par la pompe 1 montre particulièrement une haute complexité dans le spectre spatial d'émission, comparativement au cas similaire présenté en figure 3.19 pour une énergie seulement deux fois moindre.

Ce type de mesures attire fortement notre attention : dans cette situation le modèle communément admis de SHG sur un plasma trouve ses limites et ne permet plus d'expliquer le spectre d'émission à $2\omega_p$. Le régime à double impulsions constituera un sujet d'étude important dans la suite de ces travaux.

3.4/ CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Nous avons ici conçu, réalisé et commencé à exploiter une expérience pompe-sonde interférométrique, dédiée à l'observation de la dynamique d'ablation laser femtoseconde. L'impulsion pompe, mise en forme spatialement d'un faisceau de Bessel, induit dans trois milieux différents un plasma qui modifie localement l'indice de réfraction complexe. Nous imageons l'hologramme de l'impulsion sonde se propageant dans le milieu de manière colinéaire à l'axe du faisceau de Bessel, pour différents délais pompe-sonde et à différentes positions. Par démodulation numérique, nous extrayons alors l'amplitude complexe de l'impulsion sonde traversant le milieu à étudier.

À partir de l'équation de propagation dans un milieu inhomogène, nous établissons pour l'onde sonde une équation d'Helmholtz approchée nous autorisant à modéliser l'effet de

4. L'anneau extérieur est ici quasiment invisible à 330 et 1000 fs, mais toutefois bien présent lorsqu'on dilate la dynamique d'affichage.

la perturbation induite sur la propagation de la sonde entre deux plans successifs. Ainsi nous pouvons remonter à la variation d'indice point à point, et relier cet indice à la densité et à la distribution plasma pour un délai donné.

En pratique la mesure de l'indice s'avère assez complexe en raison de la sensibilité au bruit de notre mesure. Bien que la restitution de la densité plasma ne soit pas accessible en l'état, nous parvenons à donner les dimensions typiques du plasma et d'ores et déjà à observer des différences de comportement marquées entre les milieux sous une excitation identique.

Spatialement, notre mesure semble pertinente car les célérités des ondes de choc générées par l'impulsion laser sont en bon accord avec la littérature. En revanche l'indice extrait de notre algorithme de reconstruction semble quantitativement peu fiable. L'observation d'ondes de choc, issues de la relaxation mécanique du milieu dans des gammes temporelles sub-nanoseconde, nous permet de voir un comportement peu réaliste de la partie imaginaire de l'indice de réfraction reconstruit.

Ceci nous donne alors directement la direction des prochains travaux à mener. Nous prévoyons de revoir profondément la méthode de reconstruction de l'indice de réfraction à partir de l'amplitude complexe de la sonde mesurée dans plusieurs plans différents. Un soin particulier sera apporté à la réduction du bruit lié à cette opération et à éviter l'émergence d'un *crosstalk* entre les parties réelles et imaginaire de l'indice (interférence entre ces deux contributions).

Nous nous appuyons en parallèle de ces mesures sur deux expériences complémentaires, permettant de palier le manque quantitatif sur la densité du plasma atteinte. Un approche comparée expérience/simulation sur le signal d'auto-réflexion de l'onde pompe sur le plasma généré nous permet d'obtenir une estimation d'ordre de grandeur sur cette densité et de la placer pour un énergie de 1 µJ entre 0,5 et 1,5 fois la densité critique. Cette expérience se base sur la mesure du diamètre de la modification d'indice imputée au plasma, réalisée grâce à l'expérience pompe-sonde.

Enfin une seconde expérience basée sur les interactions non-linéaires sur le plasma nous a permis d'établir la première preuve expérimentale à notre connaissance de la génération d'un signal de seconde harmonique sur un plasma dans le volume de milieux ne présentant pas de condition d'accord de phase spécialement favorable. Nous mettons ici en avant le fait que l'interaction d'une impulsion laser femtoseconde avec un milieu transparent est loin d'être un problème aussi simple qu'il paraît être à première vue : l'interaction complexe entre le champ d'excitation et le plasma généré relève d'une physique riche, dont la manifestation est particulièrement visible en régime à double impulsions.

L'ensemble de ces mesures étant réalisé avec une seule et même expérience, nous avons l'assurance que les conditions d'illumination sont littéralement les mêmes d'un type de mesure à l'autre et que les comparaisons entre les grandeurs mesurées sont bien pertinentes. En cas de modification de la situation expérimentale, nous disposons par ailleurs des outils de diagnostic qui préviennent toute déviation d'une série de mesure à l'autre : par exemple, la méthode de réseau d'indice transitoire nous permet d'ajuster le délai $\tau = 0$ lors d'un changement d'échantillon ou de profondeur du plan d'interaction en son sein.

Ces expériences ne sont ici qu'à leurs premiers résultats et n'ont pas encore délivré leur plein potentiel. La preuve de principe ici présentée se limite à l'étude dans un plan unique selon l'axe z : nous prévoyons à terme d'étudier la distribution de densité du plasma à trois dimensions pour un délai fixé. L'idéal serait même d'obtenir une cartographie 3D suivant l'évolution temporelle du plasma, mais la quantité de données à acquérir place pour le moment cette mesure sur un plan utopique.

Plus réalistement, après avoir amélioré la sensibilité et obtenu validation des techniques d'extraction de l'indice de réfraction, nous pourrons débuter l'étude physique de la génération du plasma et l'influence des paramètres du faisceau pompe (énergie, polarisation, ou encore angle conique du faisceau de Bessel...). Nous avons un intérêt tout particulier pour l'étude du régime intermédiaire se trouvant entre la formation à terme d'un nanocanal ou d'une simple modification d'indice de réfraction. L'interrogation sous-jacente concerne une éventuelle différence au niveau du plasma et de sa distribution.

La présence de deux SLMs et la possibilité d'ajuster le délai entre les impulsions pompe nous oriente aussi vers l'étude de l'interaction d'un plasma pré-existant (généré par la première impulsion) avec une impulsion femtoseconde intense (deuxième impulsion), correspondant fidèlement au cas étudié par les membres de notre équipe travaillant sur la modélisation numérique (codes PIC et électro-hydrodynamique). Des comparaisons directes seront alors possibles à l'avenir, en vue d'une validation expérimentale de leur modèle.

II

APPLICATIONS À LA DÉCOUPE DU VERRE

INTRODUCTION

L'usinage laser représente en cette fin des années 2010 un marché fructueux et en constante expansion : de 3,8 en 2015, il est passé à 6,2 milliards de dollars en 2018, dont 40% environ sont liés à l'ablation laser ultrabrève [232].

Les lasers à impulsions ultra-brèves sont en effet très appropriés pour l'usinage d'une grande diversité de matériaux [23, 233] et on les retrouve aussi bien pour des applications en surface qu'à trois dimensions [234]. L'utilisation des impulsions sub-picoseconde avant les années 2010 tourne majoritairement autour du prototypage rapide et des petites séries [234], du fait des faibles puissances moyennes disponibles parmi les lasers commerciaux. Aujourd'hui, en laboratoire, les puissances moyennes accessibles dépassent la centaine de watts, même pour des impulsions sous la centaine de femtoseconde [235], et permettent d'en étendre les applications à la production en série et de masse.

Associés à la mise en forme spatiale des faisceaux, les lasers sub-picoseconde représentent notamment des excellents candidats pour l'usinage des matériaux transparents [236] et les preuves de principes d'usinages laser à l'échelle sub-millimétrique se sont aujourd'hui transformées en méthodes standardisées dans les applications industrielles [237].

Une importante catégorie d'application pour laquelle les lasers ultrarapides sont utilisés concerne la découpe haute-vitesse de matériaux transparents. En cette fin des années 2010, les vitesses de découpe et l'état de surface des bords découpés constituent les points critiques sur lesquels l'industrie se penche activement, afin de faire progresser les rendements et la qualité des pièces.

VERS LES HAUTES VITESSES DE DÉCOUPE : CLIVAGE DU VERRE

Bien que les moyens techniques soient en constante évolution, la méthode de découpe de verre employée de nos jours en industrie repose sur un procédé d'origine artisanale. Réaliser une découpe du verre de la même manière qu'on découpe du métal, c'est-à-dire par ablation complète, requiert une importante énergie afin d'usiner la tranchée nécessaire à la séparation du matériau. De plus, le verre est un matériau fragile qui tend à se briser en éclats dès lors que la densité de contrainte devient trop forte [238, 239]. Ceci limite fortement l'utilisation de méthodes de découpe par fusion locale du verre ou abrasions successives, comme avec une scie diamant ou un jet d'eau haute pression.

En pratique, la technique non-ablative la plus courante pour la découpe du verre reste le clivage [5], consistant en une technique à deux étapes :

1. on fragilise le matériau selon le motif à découper, le plus souvent en utilisant une pointe pour induire une rayure en surface ;
2. on applique ensuite une force extérieure faible, permettant de faire propager une fracture dont l'amorce est initiée par la fragilité induite en première étape.

Cette technique n'est pas récente puisqu'elle est utilisée en verrerie (notamment pour la découpe des vitraux) depuis le XII^{e} siècle avec une pointe en fer chauffée au rouge et

5. On parle de clivage lors d'une rupture selon un plan privilégié, le plus souvent en cristallographie ou géologie, en désignant une fracture selon un plan cristallin.

depuis le XV^{e} siècle avec une pointe en diamant, permettant respectivement de fragiliser le verre par chocs thermiques ou par des indentations locales. Néanmoins le clivage du verre nécessite une grande expérience manuelle pour atteindre à la fois une qualité de fracture et une précision de découpe satisfaisantes : même chez les maîtres verriers, il n'est pas rare de devoir réaliser une retouche de la découpe à l'aide d'une pince à gruger[6] ou d'une pierre à abraser en carbure de silice, de la même manière qu'une étape de polissage permet aujourd'hui de rectifier les découpes imparfaites évoquées précédemment pour les verres fins.

Aujourd'hui, l'utilisation d'un laser impulsionnel permet de remplacer les micro-indentations induites à la pointe diamant par une série d'impulsions réalisant la fragilisation nécessaire au clivage par ablation locale. Par analogie avec une rayure de surface de la lame de verre, le laser peut être focalisé en surface et déplacé pour inscrire une tranchée en V [240, 241]. Dans ce cas le matériau peut être ensuite clivé à la manière d'une tablette de chocolat, en guidant la fracture par le défaut en surface [242]. L'absence de contact entre la tête laser et matériau autorise donc un usinage sans usure, contrairement à la découpe avec un diamant qui tend à s'émousser, faisant éclater localement le verre et perdre en reproductibilité à la longue.

Au delà de la simple formation d'un vide par ablation, les impulsions laser induisent des contraintes mécaniques transitoires sous forme d'ondes mécaniques (voir chapitre 3) [152, 165, 204, 208] mais également des contraintes résiduelles [124, 128, 130, 243–246], permettant sous conditions un guidage de la fracture de proche en proche d'une modification induite au laser à la suivante.

Nous aboutissons alors au clivage laser (en anglais *stealth dicing*) développé dans les années 2000 pour la découpe haute vitesse du silicium [247, 248], en inscrivant une série de micro-cavités dans le volume et espacées de quelques microns. Cette méthode reprend donc l'idée du clivage avec une fragilisation du milieu induite dans le volume par une série d'impulsions laser ultrabrèves (figure 3.21) :

1. on fragilise un plan par une série de tirs lasers ;
2. on applique ensuite une force extérieure faible, permettant de faire propager une fracture le long des modifications induites par les tirs laser.

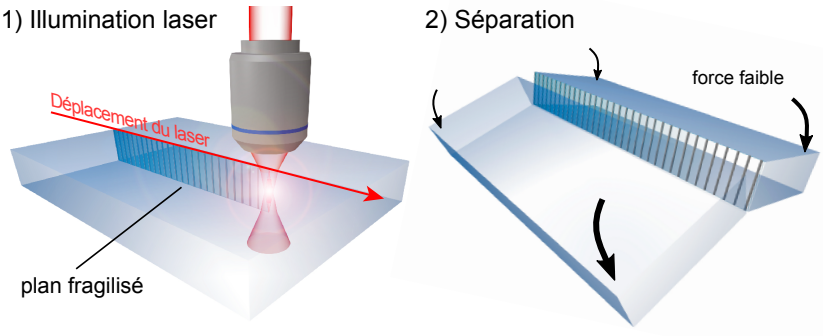

FIGURE 3.21 – Principe du clivage laser : 1) l'exposition au laser fragilise un plan dans le milieu à découper, 2) une force extérieure est ensuite appliquée, conduisant à une fracture guidée par le plan fragilisé.

L'avantage réel du laser sur les autres méthodes de clivage réside pour les matériaux

6. Grugeoir : outil servant à rogner les bords des pièces de verre afin de les ajuster à la taille exacte des calibres. Depuis le XIX^{e} siècle, on parle également de pince à gruger.

transparents dans la possibilité de modifier le matériau dans le volume [14, 69, 248] et particulièrement avec des impulsions ultrabrèves permettant de confiner l'interaction [1]. L'utilisation d'une série de modifications à haut facteur de forme par filamentation [17, 249, 250] ou encore par faisceaux non-diffractants [18, 64, 123, 251] permet alors de fragiliser le milieu sur une grande profondeur, voire sur l'ensemble de l'épaisseur du matériau et de parvenir au clivage selon un plan affaibli.

La preuve de principe de clivage par laser ultrabref a pu être établie aussi bien pour des matériaux amorphes [17] que cristallins [248, 252]. Dans les cristaux, l'influence de la polarisation tend à créer une direction privilégiée à l'apparition de fracture [19], permettant d'anticiper le guidage de proche en proche en vue d'obtenir un clivage. Dans les matériaux amorphes en revanche, l'absence de direction privilégiée complexifie l'obtention d'une fracture correctement guidée, les fissures ayant une probabilité égale de se produire dans chaque direction.

L'induction d'un plan suffisamment affaibli n'est pas toujours facile, et requiert parfois plusieurs tirs laser à un même endroit pour obtenir une accumulation des effets mécaniques. Ces tirs peuvent être localement consécutifs, pour augmenter l'efficacité des effets mécaniques ou thermiques [253, 254], ou plus éloignés dans le temps, en réalisant plusieurs passages successifs du laser sur le matériau (multipass) et en modifiant petit à petit le milieu [255–257].

À des fins d'applications à la découpe industrielle, un clivage obtenu par une simple passe du laser sur le milieu est fortement souhaité. Idéalement, les contraintes induites peuvent être même suffisamment importantes pour elles-même générer la force nécessaire au clivage comme c'est le cas pour les procédés brevetés SmartCleave™ [7] et Top Cleave™ [8]. On parle alors d'auto-clivage (*self-cleaving*), qui se produit majoritairement pour des verres chimiquement renforcés (Gorilla glass par exemple) : le renforcement chimique précontraint le verre à proximité des surfaces et ces contraintes peuvent être relaxées brutalement en une fracture, suite à l'exposition au laser localement.

DES VERRES MINCES...

Une importante part de marché concerne la découpe des éléments de protection pour les appareils de haute-technologie de poche. On retrouve le plus souvent des vitres de protection fines, de quelques centaines de microns, souvent en verre chimiquement renforcé (protections des écrans) et parfois en saphir pour des éléments davantage sensibles aux rayures (appareils photo embarqués, verre de montre de luxe...). Le cas des smartphones est un parfait exemple de l'utilisation de ces vitres (figure 3.22.a et b) : on y retrouve à la fois une protection en verre pour l'écran et une protection en saphir pour les appareils photos, dont les épaisseurs sont de l'ordre de 300-400 µm.

Ces vitres sont fréquemment mises à rude épreuve par une utilisation quotidienne et souvent dans un environnement mécaniquement difficile, par un forte exposition aux chocs et aux rayures. Ceci impose aux fabricants de trouver des méthodes de façonnage de ces éléments qui ne diminuent pas la résistance des matériaux après usinage, tout en garantissant une haute cadence de production pour satisfaire la demande sans cesse croissante de leurs utilisateurs.

7. https://www.rofin.com/m/laser-glass-cutting/smartcleave/
8. https://www.trumpf.com/fr_FR/produits/laser/systemes-optiques-dusinage/systeme-optique-de-coupe-top-cleave/

Les techniques de découpes dites mécaniques (pointes ou scies diamant, découpe à eau haute pression...) possèdent l'inconvénient de contraindre localement les matériaux lors de la découpe : des éclats apparaissent parfois lors de la séparation et des tensions résiduelles persistantes sont induites par le procédé de séparation.

Ceci engendre autant de points d'amorce pour de futures fractures lorsque la vitre est exposée à des nouvelles contraintes mécaniques. On cherche donc à minimiser les contraintes induites et à prévenir des irrégularités de séparation provenant du caractère fragile et de la structure amorphe du verre, afin d'augmenter la durée de vie de l'élément après découpe.

Un second point critique concerne la vitesse de découpe, qu'on souhaite la plus haute possible pour optimiser les rendements de production : on chiffre en millions (milliards parfois) le nombre d'exemplaires à produire. Le laser femtoseconde constitue un outil de choix pour la découpe de verre haute vitesse et permet d'atteindre des vitesses de coupe de l'ordre du m/s en utilisant les techniques de clivage présentées précédemment [237, 258].

Cependant la qualité des bords clivés limite l'efficacité totale du procédé : à la découpe laser et au clivage dont les durées n'excède pas quelques secondes, une opération de polissage des bords coupés doit être ajoutée [259–261]. En abrasant les bords et en réduisant les aspérités, le polissage augmente considérablement la résistance des vitres en supprimant l'essentiel des points de d'amorce de fracture. Cette opération nécessite cependant plusieurs dizaines de minutes et constitue le goulet d'étranglement de la chaine de production.

Dans le contexte d'une production sans cesse croissante, il existe donc un besoin critique sur l'obtention d'un procédé laser "2 en 1" pour l'usinage des vitres transparentes de quelques centaines de microns, réalisant à la fois la découpe haute vitesse et permettant d'obtenir des bords découpés à faible rugosité.

FIGURE 3.22 – a) Vue schématique d'une découpe de verre fin au laser ; b) Verre de protection d'un smartphone, 300 µm d'épaisseur ; c) Panneaux solaires, dont la vitre de protection possède une épaisseur de 3 à 4 mm. (b et c, images *Creative Commons*).

... AUX VERRES ÉPAIS

Un autre des importants remparts restant aujourd'hui à escalader se trouve dans le franchissement vers le haut d'un nouvel ordre de grandeur dans les dimensions à usiner par laser : un véritable enjeu industriel existe pour la découpe des matériaux transparents d'épaisseurs milliétriques et centimétriques. Ceci concerne particulièrement la découpe des vitres en verre, utilisées de manière omniprésente dans les systèmes exposés aux

intempéries ou le bâtiment : panneaux solaires, pare-brises automobiles, verre architectural... (figure 3.22.c).

Leur épaisseur est couramment comprise entre 3 et 10 mm et échappent pour le moment aux techniques conventionnelles d'usinage laser haute-vitesse : ces dernières sont aujourd'hui employées pour les vitres relativement fines (< 1 mm). L'industrie cherche alors à transférer ces techniques de clivage de verre mince au verre épais en utilisant des sources de plus en plus puissantes, en souhaitant idéalement égaler les performances de clivage déjà établies : des vitesses de découpe de l'ordre du m/s et une rugosité des bords découpés proche du micron.

Aux problèmes évoqués pour le verre mince, se rajoute un problème principal se trouvant dans la fragilisation d'un plan sur une grande profondeur et nécessitant d'atteindre une haute densité d'énergie sur une grande distance. Ceci impose l'utilisation de lasers dont l'énergie par impulsion dépasse le millijoule, tout en assurant un contrôle du dépôt d'énergie sur une grande longueur. Les techniques utilisant la filamentation tendent à devenir instables sur de trop longues distances, du fait des distorsions non-linéaires dans le milieu [6, 7]. L'utilisation de faisceaux de Bessel est particulièrement bien adaptée car permettant un dépôt d'énergie sur une grande profondeur et grâce à leur stabilité face aux effets non-linéaires pour un angle conique suffisant [10].

Le point bloquant s'opposant à l'usinage de verre épais se trouve au niveau des limites des systèmes optiques utilisés pour mettre en forme le faisceau, qui concilient difficilement la longueur de la zone d'interaction, le diamètre du faisceau dans l'échantillon et la tenue au flux du système lui-même. Le franchissement d'ordres de grandeurs en terme de clivage du verre passe alors par de nouvelles géométries de systèmes optiques.

TRAVAIL PROPOSÉ

Les deux chapitres à suivre dans cette seconde partie traitent indépendamment des deux limites majeures rencontrées par les industriels dans l'amélioration des techniques pour la découpe de verre.

Dans un premier chapitre, nous montrons que la géométrie des défauts induits par laser possède une influence notable sur la qualité de clivage du verre. Nous modifions la géométrie des faisceaux de Bessel (à l'origine à géométrie cylindrique) pour former, après modification, des nanocanaux elliptiques par tirs lasers uniques dans le verre, et nous comparons l'effet sur le clivage de l'utilisation de faisceaux de Bessel et de leurs alter-egos modifiés.

Nous nous intéressons particulièrement ici aux propriétés mécaniques de clivage après un passage unique sous le laser et pour différentes conditions d'illuminations. L'étude porte sur l'optimisation de la facilité de clivage ainsi que de la ténacité des bords clivés en fonction de la géométrie du faisceau et de son énergie, en réalisant des mesures aussi bien au niveau macroscopique que microscopique.

Dans le second chapitre, nous conservons une mise en forme spatiale du faisceau sous la forme d'une faisceau de Bessel et nous nous intéressons au cas de l'usinage de verre épais. Les techniques identiques ou proches de celle employée dans la première partie ne sont alors plus applicables, et une nouvelle méthode de mise en forme de fais-

ceau est nécessaire. Nous proposons et décrivons un système à 3 axicons permettant la génération d'un faisceau de Bessel centimétrique et nous observons ses performances au clivage du verre.

Nous réalisons alors la preuve de principe de clivage de précision au micron près pour des plaques de verre dont l'épaisseur peut atteindre jusqu'à 1 cm d'épaisseur, après un passage unique sous le laser. Nous étudions la qualité des bords clivés et montrons la possibilité d'atteindre des rugosités de surface comparables à celle d'un verre dépoli, et ce sans avoir à recourir à aucune opération additionnelle.

4

NANOCANAUX ELLIPTIQUES POUR CLIVAGE AMÉLIORÉ

Dans ce chapitre, nous nous interrogeons sur l'effet de la géométrie des nanocanaux induits lors d'un clivage laser par faisceaux de Bessel : que deviennent les propriétés de clivage lorsque la section des nanocanaux n'est plus cylindrique, mais présente un axe privilégié ? Nous induisons alors par filtrage spatial une déformation du lobe central d'un faisceau de Bessel de manière à inscrire dans le volume d'échantillons de verre des nanocanaux à section elliptique. Nous comparons les propriétés mécaniques de clivage de ces échantillons, en fonction de la géométrie des nanocanaux, grâce à une étude mécanique portant sur la mesure de la ténacité de clivage puis la ténacité transverse *après* clivage.

L'observation *post mortem* des échantillons au microscope électronique nous permet ensuite d'associer la propension à cliver avec les propriétés de ténacité, et ainsi de comprendre comment le comportement microscopique de fracture influence le comportement macroscopique des échantillons. Nous montrons une amélioration conjointe de 30% sur la clivabilité et la ténacité transverse des échantillons grâce à l'utilisation de faisceau de Bessel elliptique pour le clivage du verre.

Ce chapitre détaille les méthodes et résultats correspondant à deux articles publiés en journaux à comité de lecture et présentés en annexe C.1 et C.2.

4.1/ INTRODUCTION

Le clivage d'un matériau passe par la fragilisation d'un plan, dans lequel une fracture induite par une force extérieure doit se propager. Lorsque c'est possible, le guidage de cette fracture s'effectue de proche en proche en passant d'un nœud à l'autre, ces nœuds pouvant être indifféremment à l'échelle atomique (par exemple le cas du clivage de minéraux selon les plans cristallins), ou à l'échelle macroscopique (cas de la séparation de deux timbres grâce à une succession de trous millimétriques percés dans le papier). La densité de nœuds ainsi que leur morphologie sont deux points d'influence permettant de jouer sur la facilité de clivage, et une éventuelle direction de clivage préférentielle lorsque la disposition des nœuds n'est pas unidimensionnelle.

Pour le cas du clivage amorcé par laser, les grandeurs d'influence principalement utilisées sont l'espacement entre les tirs et les dimensions de la modification induite. La plupart

des applications de clivage du verre au laser impulsionnel ultrabref, par filamentation [17, 249] ou avec des faisceaux de Bessel [18, 123], utilisent une série de perçages à géométrie cylindrique. Cette solution est simple à mettre en application et a déjà montré de bons résultats pour le clivage du verre en régime sub-picoseconde [18] pour lequel les modifications induites sont plus homogènes en profondeur [250].

Du fait de la géométrie du faisceau, cylindrique aux inhomogénéités près, et du caractère amorphe (donc isotrope) du verre, les nanocanaux formés possèdent eux-mêmes une géométrie cylindrique [13, 262, 263]. Toutefois la géométrie cylindrique n'est pas optimale pour des applications de clivage. Des images au microscope électronique à balayage montrent sur des échantillons usinés par nos soins que bien qu'à l'échelle macroscopique on puisse parler de clivage, la zone de fracture ne corresponde pas parfaitement au plan usiné comme cela est visible en figure 4.1.

Un régime de fracture oscillant au long de l'échantillon de part et d'autre du plan d'usinage à quelques microns près est observé. Ceci est indésirable d'une part en raison de la précision de découpe qui devient grossière, et d'autre part, par la possibilité de trouver des nanocanaux résiduels dans la pièce découpée (figure 4.1.a) qui tendent à réduire sa robustesse mécanique aux contraintes extérieures en formant de potentiels points d'amorce de fissures une fois la pièce sous contrainte.

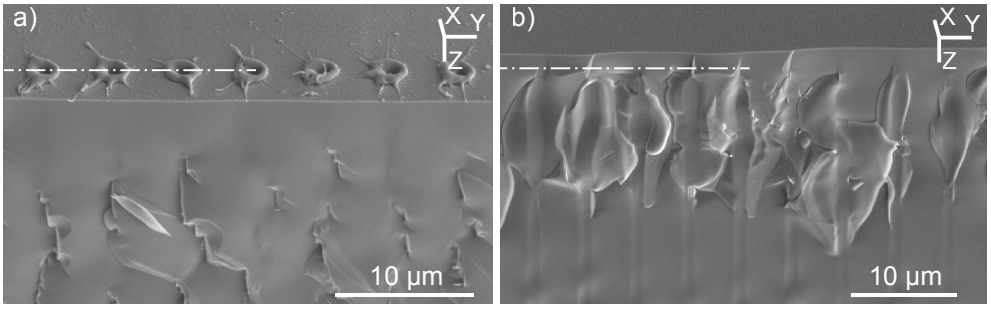

FIGURE 4.1 – Images au microscope électronique à balayage de deux échantillons clivés par faisceaux de Bessel (énergie : 12 µJ). La ligne pointillée montre l'emplacement du plan de clivage souhaité (plan d'usinage). Dans les deux cas, le clivage est imparfait car hors-plan.

Dans des plaques de verre minces ($\approx$ 100 µm), l'emploi des faisceaux gaussiens focalisés à l'aide d'une lentille cylindrique et dont le profil transverse est elliptique a permis de montrer la possibilité d'obtenir des alésages elliptiques en surface, conduisant à une fracture fortement guidée et un clivage aisé grâce à la géométrie de zone ablatée [264]. Collins et O'Connor attribuent la propension à guider la fracture à l'augmentation des contraintes locales au niveau du grand axe de l'ellipse induite, lors de la déflexion menant à la fracture.

De manière concomitante avec notre étude, Dudutis *et al.* ont montré qu'un axicon imparfait induisant de l'astigmatisme permet de générer des faisceaux de Bessel perdant leur géométrie cylindrique et permettant d'induire dans le verre des fissures, dont l'orientation dépend directement de l'orientation de l'axicon [265].

Ces deux études illustrent la possibilité de contrôler la localisation des contraintes en vue de faire fracturer de manière contrôlée un milieu. Sur le même principe, et par extension dans la profondeur de l'échantillon, nous nous intéressons alors à la modification de la section des nanocanaux de manière à améliorer les propriétés de clivage du verre après

usinage. Nous cherchons à réaliser un guidage de la fracture dont la précision descend sous le micron, tout en préservant les propriétés mécaniques du matériau après clivage.

Ce chapitre présente les techniques d'ingénierie optique dans le plan de Fourier que nous avons utilisées pour modifier le profil d'intensité d'un faisceau de Bessel en vue de produire des nanocanaux dont la section est étirée dans une dimension. Nous réalisons alors des nanocanaux à section elliptique, dont nous pouvons tirer profit pour des applications au clivage du verre. Notre étude mécanique montre un avantage significatif à utiliser de tels canaux par comparaison aux nanocanaux cylindriques : nous facilitons et améliorons la qualité de clivage, tout en augmentant la robustesse des échantillons clivés.

Approche analytique : facteur de concentration de contrainte Le facteur de concentration de contrainte κ (*stress concentration factor*) caractérise l'accumulation locale de contrainte et permet de déterminer le lieu le plus probable de formation d'une fracture aux abords d'un défaut donné. Il est possible d'estimer ce facteur de manière analytique pour une grande diversité de géométrie de défauts [238, 266, 267] et particulièrement à proximité d'un trou elliptique [268–273]. Dans le cas d'une plaque mince infinie et pour une ellipse de grand axe a et de petit axe b, l'expression de κ aux extrémités du grand axe prend la forme $\kappa_{ell} = 1 + {}^{2a}/_{b}$ [271].

Le cas d'un défaut circulaire donne $\kappa_{circ} = 3$ pour tous points du cercle. Une ellipse de rapport d'aspect 2:1 conduit à $\kappa_{ell,2:1} = 5$ au niveau de son grand axe et $\kappa_{ell,1:2} = 2$ au niveau du petit axe. On note que le cas elliptique offre sur un axe une valeur plus grande que κ_{circ} et à l'inverse plus faible sur l'autre axe.

Le trou circulaire concentre les contraintes sur l'ensemble de son périmètre : un cercle ne possède pas de direction privilégiée de fracture. Le cas elliptique tend à concentrer les contraintes au sommet du grand axe, en les réduisant au niveau de son petit axe : par sa géométrie un profil elliptique favorise théoriquement une fracture amorcée au niveau du grand axe. Ce constat motive l'utilisation de nanocanaux elliptiques pour faire cliver nos échantillons de verre, dont la section ellipse sera orientée afin d'exacerber les contraintes dans la direction du plan de fracture souhaité.

4.2/ RÉALISATION DE NANOCANAUX ELLIPTIQUES

4.2.1/ MONTAGE EXPÉRIMENTAL ET FILTRAGE DE FOURIER

Le dispositif expérimental se compose d'un laser amplifié Ti:Saphir, délivrant de impulsions de 120 fs au taux de répétition de 5 kHz. Le compresseur interne autorise un étirement de l'impulsion jusqu'à 3 ps environ. Nous pouvons ajuster l'énergie par impulsion ainsi que l'état de polarisation grâce à la rotation de deux lames indépendantes : une lame demi-onde associée à un polariseur et une lame quart-d'onde placée juste en amont du montage de mise en forme spatiale, permettant d'obtenir une polarisation circulaire au niveau de l'échantillon [274].

Le montage expérimental est présenté en figure 4.2. La mise en forme spatiale est réalisée au moyen d'un axicon de faible angle (0,5°) associé à un télescope de grandissement M = 1/69,4 composé d'une lentille de 250 mm et d'un objectif de microscope

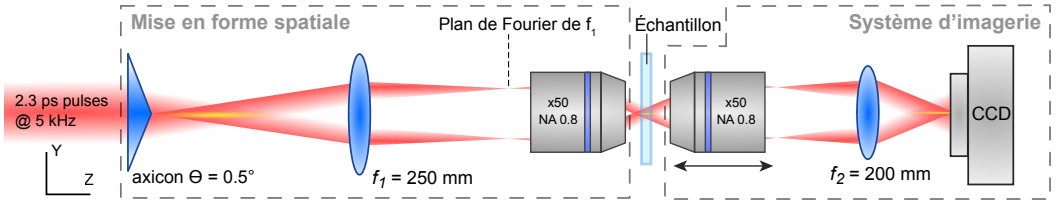

FIGURE 4.2 – Schéma du montage expérimental utilisé pour la génération de nanocanaux elliptiques. L'ensemble est identique à un montage conventionnel d'usinage par faisceaux de Bessel, à la différence du filtrage spatial réalisé dans le plan de Fourier du premier télescope.

($\times$ 50, NA = 0,8). Le faisceau de Bessel produit possède un angle conique de 16° et une longueur de 170 µm dans l'air. Un second télescope (M' = 55) associé à une caméra et monté sur une platine de translation permet d'imager plan par plan dans l'air le profil d'intensité à 3 dimensions. Une platine motorisée micrométrique à 3 axes assure le positionnement et le déplacement de l'échantillon par rapport au faisceau de Bessel conservé fixe.

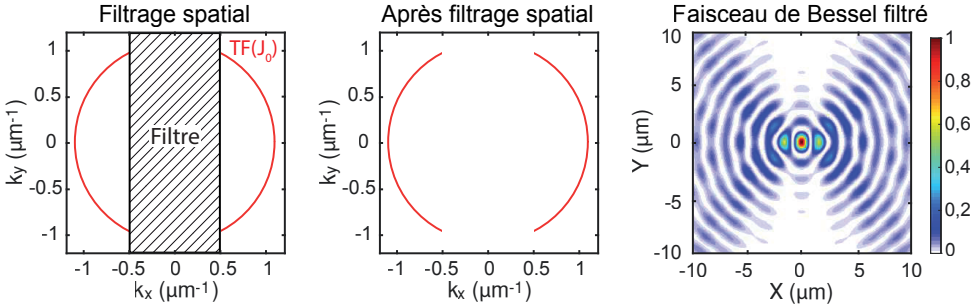

FIGURE 4.3 – Dans le plan de Fourier de la première lentille, le faisceau de Bessel généré par l'axicon prend la forme d'un anneau (en rouge). Le filtre spatial utilisé élimine toutes les fréquences $|k_x| < 0.5$ µm^{-1} (en hachuré). De ce filtre n'émergent que deux lobes, formant par la suite un faisceau de Bessel modifié (après une transformée de Fourier par l'objectif de microscope).

L'arrangement télescopique permettant la génération du faisceau de Bessel possède un plan de Fourier, correspondant au plan confocal. Nous réalisons une opération de filtrage spatial dans ce plan, en éliminant un ensemble de fréquences spatiales selon l'axe x. Cette troncature entraine la disparition d'une partie des lobes latéraux du faisceau de Bessel et à l'allongement du lobe central selon l'axe y. Un calcul de propagation par spectre d'ondes planes nous permet de simuler le profil d'intensité obtenu après le premier objectif de microscope [99]. Nous pouvons étudier quantitativement l'influence de la largeur du filtre spatial sur le profil du lobe central du faisceau de Bessel.

Nous choisissons une largeur de filtre conduisant à un profil transverse du lobe central dont le rapport d'aspect approche 2:1. Expérimentalement, le filtre spatial est une simple lame métallique de largeur 465±5 µm (longueur $>$ 2 cm, épaisseur $\approx$ 100 µm), positionnée par rapport à l'anneau obtenu dans le plan de Fourier par une platine de translation à deux axes. Ce filtre correspond à l'élimination des fréquences spatiales telles que $|k_x| \lesssim$ 0,5 µm^{-1} (voir figure 4.3) .

4.2.2/ CARACTÉRISATION DES FAISCEAUX DE BESSEL ELLIPTIQUES

La caractérisation des faisceaux obtenus après filtrage passe par l'utilisation du profil simulé par spectre d'ondes planes et par l'imagerie plan par plan du faisceau expérimental. Ceux-ci sont donnés en figure 4.4. En comparant les profils transverses simulé (a) et expérimental (b), on remarque le très bon accord entre le faisceau espéré et le faisceau réellement généré. Une vue en détail sur le cœur du faisceau montre l'existence d'un lobe central allongé selon la direction y, dont le rapport d'aspect à mi-hauteur est 3:2. Ce lobe central est entouré de deux autres lobes latéraux, correspondant aux restes du premier lobe annulaire présent dans un faisceau de Bessel non-modifié.

En théorie, le faisceau obtenu après filtrage conserve ses propriétés non-diffractantes car résultant toujours d'une interférence à deux ondes en géométrie cylindrique, bien que certaines contributions spatiales aient été filtrées. Nous confirmons ici le caractère non-diffractant du faisceau formé aussi bien en simulation qu'expérimentalent en observant les sections longitudinales (figure 4.4.c-f) : le profil transverse reste constant tout au long de la propagation, aux variations d'intensité près.

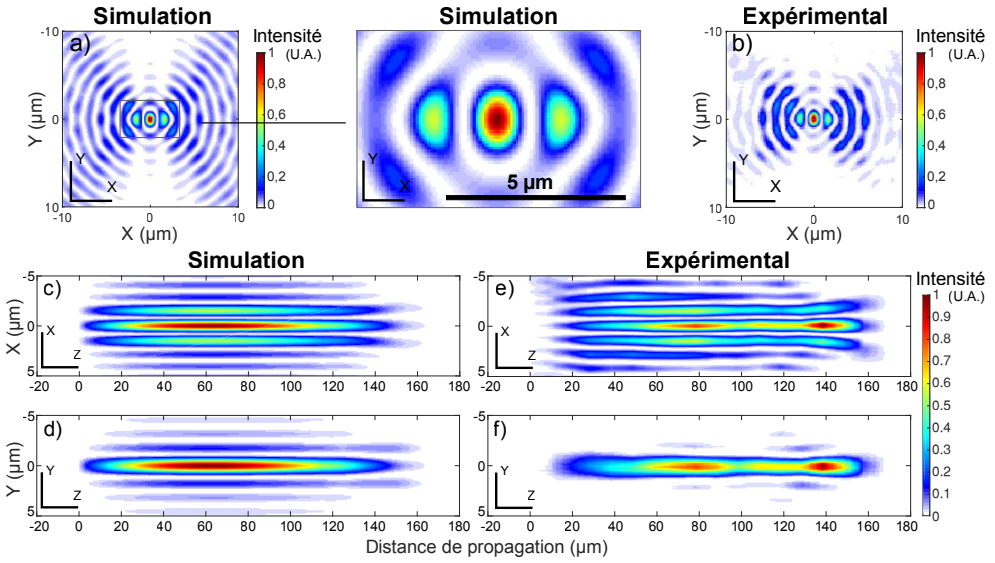

FIGURE 4.4 – Sections transverses (a-b) et longitudinales (c-f) de faisceau de Bessel modifiés par filtrage spatial. On compare ici les profils de faisceau simulés (a,c-d) et expérimentaux (b,e-f), montrant un très bonne correspondance, à quelques inhomogénéités près (dues aux imperfections de l'axicon [265]).

Par analogie aux faisceaux de Bessel et leurs propriétés non-diffractantes et par le profil pseudo-elliptique pris par le lobe central nous nommerons par la suite *faisceau de Bessel elliptique* le faisceau obtenu par filtrage spatial utilisé dans ce chapitre.

Nous pouvons remarquer que le profil d'intensité du lobe central $I(z)$ sur les coupes longitudinales expérimentales en figure 4.4.e-f ne correspond pas exactement au profil simulé : un point chaud est notamment observé vers z = 140 µm[1]. L'origine de ce point chaud est attribuée à un cas typique d'imperfections des axicons : la pointe n'est pas parfaitement conique mais arrondie, entrainant des oscillations de l'intensité le long de l'axe optique [265]. Ce défaut peut être en partie compensé en inclinant l'axicon pour introduire

1. Ce point chaud est également observé sur le profil d'un faisceau de Bessel sans filtrage.

de l'astigmatisme [275], cependant nous choisissons de conserver le profil d'intensité en l'état puisque celui reste relativement homogène au long de la propagation, hormis le point chaud présent en fin de faisceau qui ne met pas en péril les applications.

4.2.3/ CARACTÉRISATION DES NANOCANAUX INDUITS

Nous observons au microscope à balayage électronique (MEB) les nanocanaux induits par les deux profils de faisceaux. Une observation de la face inférieure de l'échantillon permet d'observer facilement le profil transverse des nanocanaux induits. L'utilisation d'un faisceau d'ions focalisé (FIB) nous permet de creuser dans l'échantillon et de vérifier que ce profil est bien conservé sur une grande profondeur.

Pour une énergie suffisante, les faisceaux de Bessel à fort angle génèrent dans le verre des nanocanaux à section circulaire dont le diamètre avoisine quelques centaines de nanomètres [13, 262, 263]. Dans notre cas, l'utilisation de nos faisceaux de Bessel modifiés montre également la génération de nanocanaux, dont le profil en face de sortie est cette fois elliptique (figure 4.5.a et b). Pour des énergies de 12 et 18 µJ et une durée d'impulsion de 2,3±0,2 ps, le rapport d'aspect de la section elliptique des nanocanaux est de 2:1 dans les deux cas.

Ces nanocanaux sont traversants pour une épaisseur de verre de 150 µm, car débouchants au niveau des deux faces de l'échantillon. Pour le cas à 18 µJ, nous remarquons que les deux lobes latéraux (dont l'intensité maximale atteint 60 % de celle du lobe central) sont également capables de générer des usinages elliptiques en face de sortie, dont les dimensions sont similaires à celui du lobe central.

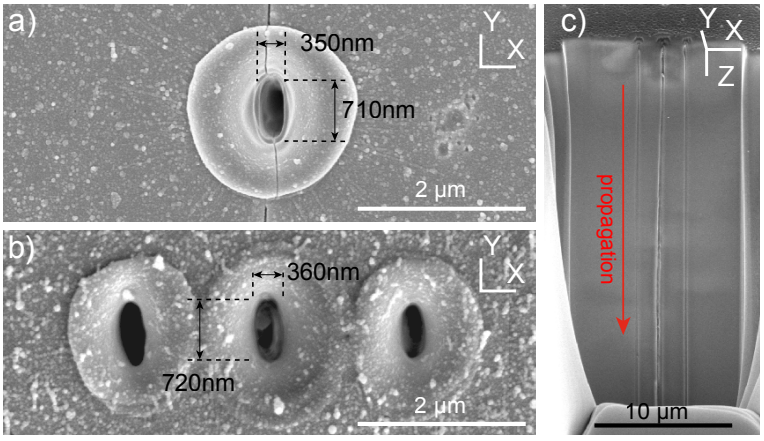

FIGURE 4.5 – Images au microscope électronique à balayage des nanocanaux elliptiques obtenus par des impulsions uniques dont la durée est de 2,3 ps. (a) et (b) vues de la face inférieure de l'échantillon, après usinage à des énergies respectives de 12 et 18 µJ. (c) Preuve de l'existence de nanocanaux par creusement au faisceau d'ion focalisé d'une poche dans l'échantillon, affleurant les 3 nanocanaux elliptiques obtenus à 18 µJ.

L'utilisation du faisceau d'ions focalisé permet de creuser une poche en profondeur de l'échantillon sur plusieurs dizaines de microns. La méthode utilisée est détaillé en annexe B. Par approche fine du creusement, nous parvenons à ouvrir par le côté des canaux vides, dont les dimensions sont sub-microniques (figure 4.5.c). Nous avons ici la preuve de génération de nanocanaux elliptiques à haut facteur de forme par l'utilisation

de faisceaux de Bessel modifiés. Pour une énergie de 18 µJ, la figure 4.5.c montre même l'existence de 3 nanocanaux elliptiques, espacés de 1,7 µm.

En observant attentivement la figure 4.5.a, nous remarquons l'existence de deux fissures dont les amorces se trouvent au sommet du grand axe du nanocanal elliptique. Nous notons que ces fissures ne se produisent pas de manière systématique pour chaque échantillon ni pour chaque nanocanal (4.5.b), mais qu'elles se forment toujours aux sommets des ellipses lorsqu'elles existent, en accord avec les prévisions établies dans la section 4.1.

4.3/ AMÉLIORATION DES PERFORMANCES DE CLIVAGE DE VERRE MINCE

Bien que semblables, deux échantillons à l'origine identiques et usinés dans les mêmes conditions d'illumination n'ont que peu de chance de produire une fracture similaire : la mécanique de la rupture reste sujette à une forte stochasticité. Afin de fiabiliser nos mesures et minimiser les écarts liés à des événements exceptionnels, nous réalisons pour chaque ensemble de paramètres expérimentaux un lot de 10 échantillons. L'ensemble d'un lot d'échantillons est traité de manière identique, et nous faisons varier d'un lot à l'autre les conditions d'illumination laser. Après illumination, les échantillons sont fracturés et leur ténactié est mesurée, permettant de comparer quantitativement l'effet de la géométrie des nanocanaux sur les propriétés de clivage du verre.

4.3.1/ MESURES DE TÉNACITÉ : BANC DE FLEXION

La propension d'un matériau à résister à la fracture se caractérise par sa ténacité. L'évaluation de la ténacité est possible par un test de flexion, sur un banc mesurant la force ou la déflexion nécessaire pour faire fracturer l'échantillon à mesurer. J'ai construit un banc de flexion à 3 points, présenté en figure 4.6, à l'aide d'une platine micrométrique manuelle qui joue le rôle d'actuateur et de système de mesure (b et c). Des lames de rasoir jouent le rôle des deux points de support et la lame fixée à la platine micrométrique appuie et fait fléchir l'échantillon à mesurer. Notre grandeur d'intérêt est la déflexion que peut endurer l'échantillon, définie par la distance parcourue par la ligne d'appui entre le premier contact et la fracture.

La déflexion quantifie indirectement la ténacité de l'objet mais n'est pas suffisante pour étudier la fracture. Nous distinguerons dans nos mesures deux cas de fracture après usinage : le clivage, dans lequel la fracture est guidée par le plan d'usinage laser et où la séparation se produit en deux pièces ; et la cassure, qui concerne tous les autres cas (fracture non-guidée, ou en plus de deux morceaux). Le verre agit comme un matériau fragile et permet une distinction très nette des comportements de fracture comme le montre la figure 4.7.

4.3.2/ ÉLIMINATION DES BIAIS EXPÉRIMENTAUX

Pour chaque volet de notre étude, l'ensemble des lots d'échantillons a été usiné dans la même journée afin d'éviter les variations des paramètres laser entre deux allumages. De

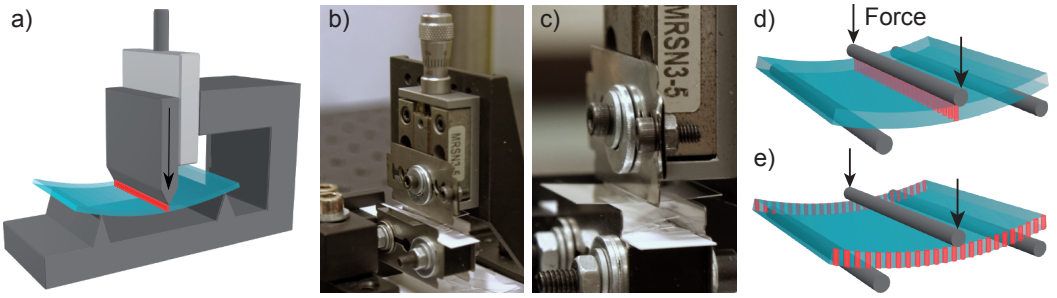

FIGURE 4.6 – Banc de test à 3 points : vues schématique (a) et réelles (b-c). La platine de translation associée aux lames de rasoir assure la flexion de l'échantillon et mesure la déflexion nécessaire à la fracture. (d) Principe de la flexion pour mesurer la ténacité de séparation, (e) pour la mesure de la ténacité des bords après clivage. La zone rouge représente le plan usiné au laser.

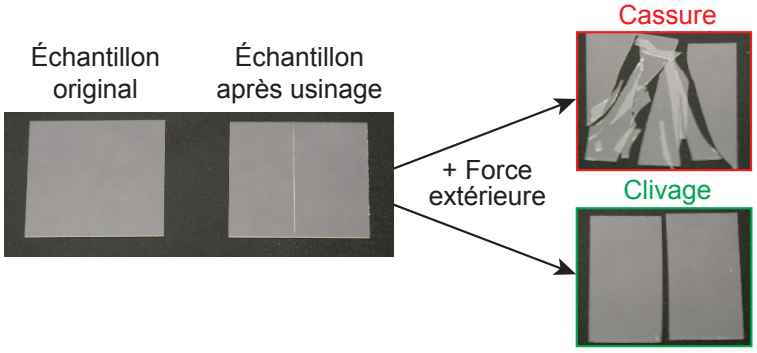

FIGURE 4.7 – Distinction des comportements de fracture après usinage de l'échantillon : une séparation guidée et en deux pièces seulement est considérée comme un clivage ; tous les autres cas de fracture non-guidée ou en plusieurs morceaux sont classés comme des cassures.

la même manière, les routines de placement des échantillons, d'usinage puis de clivage ont été standardisées pour éviter tout biais statistique.

Le principe de notre étude repose sur la mise en évidence l'existence d'une direction privilégiée pour le clivage du verre. Nous nous assurons de l'absence de toute direction privilégiée dans notre montage expérimental lorsque l'on usine avec des faisceaux de Bessel : le verre étant uniforme, le faisceau de Bessel possédant une géométrie cylindrique et la polarisation étant circulaire, l'ensemble des résultats doivent être indépendants de la direction. En d'autres termes, deux échantillons identiques usinés au laser par un déplacement relatif selon les directions x ou y de la platine de translation à 3 axes doivent mener à des résultats indiscernables en terme de clivage.

Nous usinons 2 lots d'échantillons, en utilisant un faisceau de Bessel avec une énergie par impulsion de 18 µJ, réalisant une passe unique sous le laser à une vitesse de 25 mm/s (5 µm entre deux tirs). 10 échantillons sont usinés avec un déplacement selon l'axe x et 10 autres selon l'axe y. Ces 20 échantillons sont placés sous le banc de test de déflexion et nous mesurons la déflexion à la fracture.

Le premier cas nous donne d_x = 0,26±0,07 mm et le second d_y = 0,26±0,10 mm (100% des échantillons fracturent en clivant). Les résultats étant identiques aux incertitudes

près, nous pouvons donc raisonnablement exclure ici tout biais quant à une direction privilégiée dans notre système pour un profil du faisceau à géométrie cylindrique.

Le choix de la durée d'impulsion provient d'un compromis entre les limites de la chaine laser amplifiée (étirement maximal théorique du compresseur : 3 ps) et les propriétés de clivage du verre. Des mesures préliminaires ont montré une faible propension au clivage après usinage pour des durées d'impulsions sub-picoseconde, et des propriétés de clivage systématique au delà de 1 ps. Nous nous plaçons en régime picoseconde avec un choix de durée d'impulsion à 2,3±0,2 ps, permettant de satisfaire de bonnes conditions de clivage, tout en restant dans la gamme de durée d'impulsion accessible à notre autocorrélateur (gamme de mesure : impulsion de 2,5 ps maximum) pour connaître la durée exacte de l'impulsion.

4.3.3/ TROIS SITUATIONS D'USINAGE

Afin de comparer l'effet de la géométrie des nanocanaux sur les propriétés de clivage, nous usinons des séries d'échantillons pour trois configurations de faisceaux différentes (figure 4.8). La première sert de référence et concerne le faisceau de Bessel (FB) : la direction d'usinage ne possède pas d'importance comme nous avons pu le voir dans la section précédente. Les deuxièmes et troisièmes cas concernent le faisceau de Bessel elliptique, pour lesquels nous étudions le comportement selon les deux axes de symétrie. Le faisceau est conservé fixe, mais la direction d'usinage relative est différente. Il en résulte une série de tirs pour lesquels la direction d'écriture se fait parallèlement au grand axe de l'ellipse ($FBE_{//}$) ou orthogonalement ($FBE_{\perp}$).

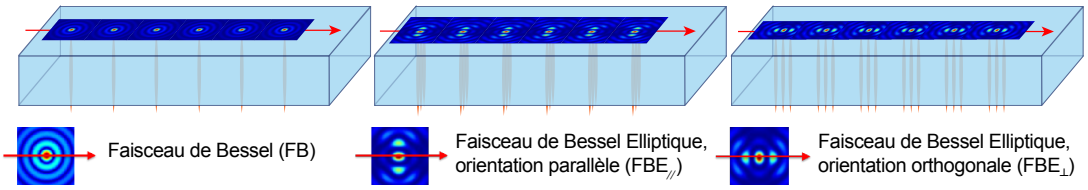

FIGURE 4.8 – Utilisation de trois situations d'usinage différentes : le déplacement relatif de l'échantillon par rapport au faisceau permet d'exploiter les différents axes de symétrie du faisceau. Pour le faisceau de Bessel (FB) cette direction est prise arbitrairement, et pour le faisceau de Bessel elliptique (FBE) les deux directions de déplacement correspondent aux grand ($FBE_{//}$) et petit axes de l'ellipse ($FBE_{\perp}$).

Pour chaque configuration de faisceau, 3 énergies sont utilisées : 6, 12 et 18 µJ. L'intensité atteinte au niveau du lobe central est environ 35% plus faible pour le cas elliptique par rapport au faisceau de Bessel originel : la comparaison des cas Bessel à 12 µJ et Bessel elliptique à 18 µJ permettra si besoin une comparaison à intensité du lobe central équivalente.

4.3.4/ TÉNACITÉ DE SÉPARATION

On trace en figure 4.9 la déflexion lorsqu'intervient la fracture pour différents cas d'usinage laser : on compare l'utilisation de faisceaux de Bessel avec les faisceaux de Bessel elliptiques (utilisés dans une direction ou une autre) pour des énergies mesurées au niveau de l'échantillon de 6, 12 et 18 µJ. Les étoiles rouges représentent les cassures et

les disques verts les clivages et on affiche la statistique de fracture sous la forme d'un cercle noir pour la moyenne et d'une barre d'erreur.

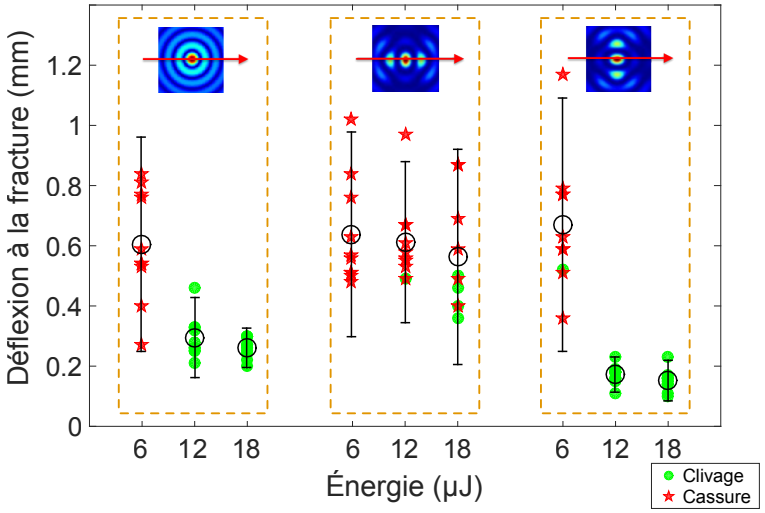

FIGURE 4.9 – Valeurs de déflexion mesurées lors du clivage après usinage par trois formes de faisceau et trois énergies différentes. Les cas de clivage sont montrés par un disque vert et les cas de cassure par une étoile rouge. En noir figurent la valeur moyenne (cercle) et la barre d'erreur associée.

Nous constatons en premier lieu que pour l'ensemble des cas dont l'énergie est de 6 µJ, les échantillons cassent systématiquement (29 sur 30 cas) et on observe une forte dispersion sur la déflexion, pour une moyenne située vers 0,6 mm. Pour donner une référence, un échantillon vierge casse pour une déflexion de 0,8±0,3 mm.

Le cas circulaire (à gauche) et le cas elliptique parallèle (à droite) montrent un comportement identique entre eux : dès 12 µJ, l'ensemble des échantillons clivent pour des valeurs de déflexion peu dispersées autour d'une moyenne inférieure à 0,3 mm. À l'inverse le cas elliptique orthogonal (au milieu) ne mène que rarement à un clivage avec seulement 3 cas sur 10 à 18 µJ, et nous conservons une grande dispersion sur les valeurs de déflexion, dont la moyenne reste autour de 0,6 mm.

Des impulsions de 6 µJ ne génèrent pas une distribution de contrainte suffisant à faire cliver l'échantillon : la dispersion observée correspond au caractère aléatoire de l'amorce de fracture. Pour des énergies plus hautes, une véritable différence mécanique existe entre les deux cas elliptiques : à énergie égale, l'un parvient à faire cliver systématiquement alors l'autre ne conduit majoritairement qu'à des cassures : nous démontrons ici l'influence de la géométrie des nanocanaux, et particulièrement l'influence de l'orientation de l'axe privilégié du nanocanal sur le clivage du verre mince.

Nous comparons de manière plus poussée les deux cas possédant de bonnes capacités de clivage. Une autre manière de représenter ces mêmes données consiste à tracer la proportion d'échantillons fracturés en fonction de la déflexion appliquée (figure 4.10). De cette manière, nous pouvons modéliser le comportement des échantillons par une distribution cumulative de Weibull [276] permettant de retranscrire la probabilité de fracture en fonction de la déflexion. Cette distribution à deux paramètres s'écrit :

$$W(d) = 1 - \exp\left(\frac{-d}{\beta}\right)^{\alpha} \tag{4.1}$$

Les deux paramètres α et β permettent d'ajuster la distribution aux données expérimentales par une méthode des moindres carrés. Le coefficient α est le paramètre de forme et n'a pas d'unité : il est inversement proportionnel à la variance de la distribution et témoigne de la dispersion des données. β est ici une longueur et représente la valeur de déflexion pour laquelle statistiquement 63% des échantillons auront fracturé, donnant la déflexion typique de la série de mesure.

En estimant les valeurs de α et β entre chaque cas, on peut donc quantitativement comparer l'effet des différents usinages sur les propriétés de fracture. Notre étude portant sur l'amélioration des performances de séparation par clivage laser, nous préférerons un paramètre α le plus haut (faible dispersion des valeurs) et β le plus faible (effort minime pour le clivage).

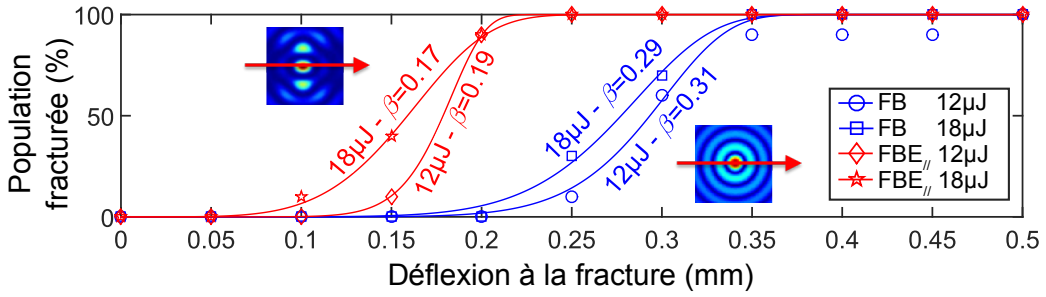

FIGURE 4.10 – Graphes de Weibull, reprenant les données présentées en figure 4.9 pour les cas du faisceau de Bessel (FB) et du faisceau de Bessel elliptique (FBE), à 12 et 18 µJ.

Deux populations différentes de données sont visibles sur la figure 4.10 et dépendent uniquement de la forme du faisceau : à gauche et en rouge se trouvent celles du cas elliptique ; à droite et en bleu celles du cas circulaire. Cette différence existe pour les deux énergies utilisées. De manière moindre et pour chaque profil de faisceau, l'énergie la plus haute possède une courbe située plus à gauche que son homologue de plus basse énergie.

Une courbe dont le point d'inflexion se trouve vers la gauche du graphe correspond à une fracture nécessitant une déflexion faible, c'est-à-dire une fracture aisée. Nous en déduisons qu'à énergie égale, un profil elliptique des nanocanaux orienté parallèlement à la direction de déplacement du laser permet un clivage fortement amélioré par rapport au cas de nanocanaux à section circulaire. De plus, l'utilisation de hautes énergies permet un clivage amélioré pour un profil de faisceau donné.

Énergie (µJ)	Bessel 12 µJ	Bessel 18 µJ	FBE$_{//}$12 µJ	FBE$_{//}$18 µJ
α (sans unité)	9,4	7,7	10,5	7,0
β (mm)	0,31	0,29	0,19	0,17

TABLE 4.1 – Coefficients α et β permettant la modélisation des points expérimentaux pour différentes conditions d'illumination.

L'observation des coefficients α et β (présentés en table 4.1) modélisant le comportement expérimental confirme notre analyse et nous permet de quantifier le taux d'amélioration. β représente la déflexion typique et nous sert de score pour la facilité de clivage : pour des énergies identiques, le faisceau de Bessel à section elliptique améliore de 30% la

facilité de clivage par rapport à l'utilisation d'un faisceau de Bessel.

4.3.5/ TÉNACITÉ TRANSVERSE

La facilité de clivage n'est pas le seul critère pour juger de la qualité d'une découpe. En faisant cliver un échantillon le long d'une série de nanocanaux, nous induisons autant de potentiels points d'amorce de fissure que de nanocanaux : un échantillon voit la ténacité de son bord clivé diminuer sous une série de modifications trop importantes.

Nous mesurons à présent la ténacité *transverse* de l'échantillon et nous observons l'influence de la géométrie de nanocanaux sur les propriétés mécaniques de l'échantillon après découpe. Cette fois, une haute qualité de clivage correspond à une forte propension à résister à la fracture et par conséquent à une grande déflexion encaissée par l'échantillon. Pour des applications industrielles, le candidat idéal permet à la fois un clivage facile et une bonne ténacité transverse.

Un série d'échantillons est réalisée pour les 4 conditions menant à un clivage systématique : faisceaux de Bessel circulaire et Bessel elliptique (orientation parallèle), à 12 et 18 µJ. Afin d'éviter de subir des effets provenant de la découpe des échantillons par le fabricant, nous usinons et clivons deux bords parallèles espacés de 12 mm : la ténacité transverse mesurée ne dépend alors que de l'usinage utilisé pour faire cliver ces deux bords.

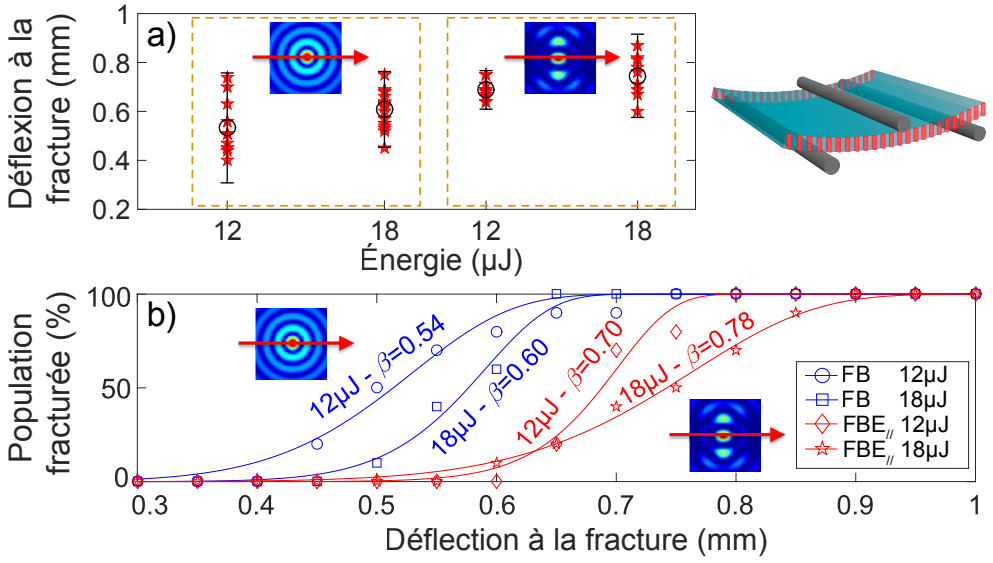

FIGURE 4.11 – Comparaison des résultats de ténacité transverse pour les cas circulaire et elliptique, à 12 et 18 µJ, sous forme de 4 populations (a) et d'un graphe de Weibull (b). Le cas elliptique présente une déflexion systématiquement plus haute ($\beta \geq 0{,}70$ mm) que pour le cas circulaire ($\beta \leq 0{,}60$ mm).

La figure 4.11 présente les valeurs de déflexion conduisant à la cassure de nos échantillons pré-clivés : du fait de l'absence de tout plan de guidage, la flexion ne peut que conduire à une fracture non-guidée. La figure 4.11.a montre que les échantillons usinés par le cas elliptique peuvent accepter en moyenne une plus grande déflexion qu'avec le cas circulaire. La dispersion à 18 µJ est similaire pour les deux profils de faisceau,

mais à 12 µJ le cas elliptique montre une dispersion fortement réduite par rapport au cas circulaire.

Ces comportements se retrouvent sur les graphes de Weibull de la figure 4.11.b. Pour des énergies identiques, le cas elliptique donne des valeurs de β 30% supérieures au cas circulaire. La ténacité transverse est améliorée de 30% grâce à des nanocanaux elliptiques plutôt que circulaires, pour les deux énergies testées ici.

Nous comparons ces valeurs à celles obtenues par un procédé industriel de découpe mécanique (cas de nos échantillons : coupe diamant + polissage). La déflexion transverse typique de la découpe mécanique est de 0,83±0,5 mm (β = 0,92 mm). Les échantillons clivés mécaniquement possèdent une ténacité transverse en moyenne 15% plus grande que pour notre meilleur cas, mais la dispersion sur les valeurs est très importante : ± 0,5 mm contre seulement ±0,2 mm pour le cas elliptique à 18 µJ.

Il en résulte statistiquement une rupture de 30% des échantillons à des faibles valeurs de déflexion (< 0,6 mm) pour le cas de la découpe mécanique alors que les échantillons usinés par faisceaux de Bessel elliptiques n'ont que moins de 10% de chance de rompre pour une même déflexion. Notre approche est donc avantageuse car elle réduit la probabilité de fracture à faibles déflexions, tout en ne nécessitant aucune opération de polissage après clivage.

4.4/ COMPORTEMENT DE FRACTURE À L'ÉCHELLE MICROSCOPIQUE

À l'échelle macroscopique, nous constatons des différences importantes sur les propriétés de fracture, aussi bien en vue d'un clivage qu'en ce qui concerne la ténacité des bords une fois clivés. Nous observons dans cette partie le comportement de fracture à l'échelle des nanocanaux et la qualité de guidage de la fracture par rapport au plan souhaité. Nous observons le profil des bords clivés au microscope électronique à balayage et nous comparons les deux cas circulaire et elliptique. Parallèlement, nous mesurons au profilomètre optique l'état de surface global des bords clivés en fonction des conditions d'usinage.

Sur la figure 4.12, nous pouvons comparer pour le cas E_p = 12 µJ l'effet des deux profils de faisceau. Comme montré dans l'introduction de ce chapitre (figure 4.1), le faisceau de Bessel circulaire conduit à un clivage imparfait et s'écartant au niveau de la face inférieure de quelques microns par rapport au plan d'usinage (a). La vue de l'ensemble du bord clivé montre des différences de régime de fracture sur plusieurs régions et des oscillations sur une grande surface (b-c). Le plan de fracture ne rejoint le plan d'usinage que dans le premier tiers (b, en bas ; c, à droite) de l'épaisseur de l'échantillon, dans lequel les nanocanaux sont ouverts.

Le cas elliptique montre un régime de clivage régulier et passant par le plan d'usinage à moins d'un micron près (d) : nous avons pu vérifier que tous les canaux de l'échantillon étaient ouverts par la tranche. Les canaux sont ouverts par le clivage sur l'ensemble de la hauteur de l'échantillon (d-e) et le profil global du plan clivé est plus homogène (e-f) qu'avec le cas circulaire.

L'état de surface des échantillons clivés est observé au profilomètre optique, avec un grossissement × 40 et une ouverture numérique de 0,6. Formé par un microscope

équipé d'objectifs à interféromètre de Mirau, ce dispositif originellement introduit sous le nom de Rugomètre [277] mesure par interférence l'écart à un plan d'un profil en élévation d'une surface partiellement réfléchissant. Dans notre cas, le profil d'élévation sur le bord clivé est reconstitué par holographie à décalage de phase, à partir de quatre images numériques obtenues pour quatre profondeurs de focalisation sur l'échantillon (échantillon déplacé selon l'axe vertical par une cale piézoélectrique). La zone observée couvre une surface de 150 × 150 µm^2.

La rugosité (*RMS*, rugosité moyenne quadratique) mesurée est de 0,60±0,05 µm pour le cas circulaire contre 0,50±0,05 µm pour le cas elliptique à 12 µJ. Pour le cas à 18 µJ, un comportement de fracture identique est observé aussi bien qualitativement que quantitativement : l'utilisation de nanocanaux circulaires conduit à une fracture partiellement guidée et irrégulière (rugosité : 0,60±0,05 µm RMS) tandis que les nanocanaux elliptiques améliorent grandement la régularité et la rugosité du bord clivé (0,45±0,05 µm).

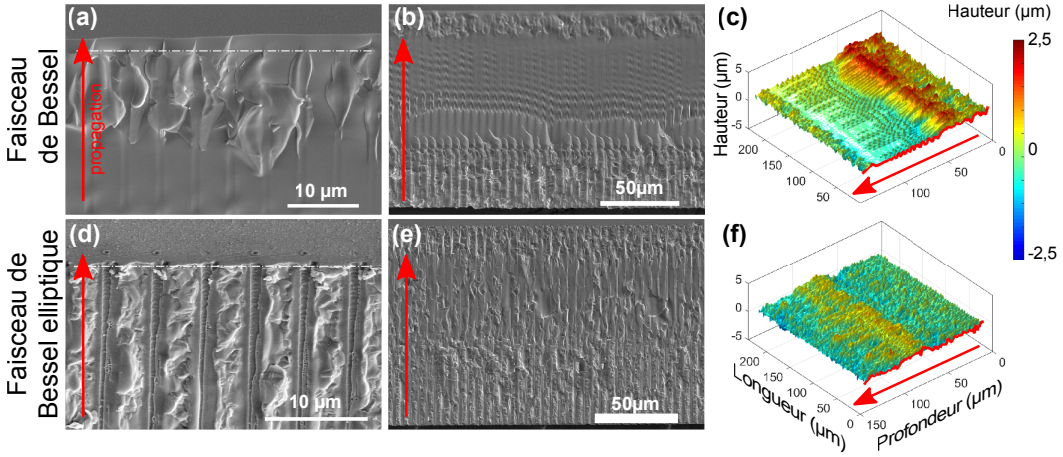

FIGURE 4.12 – Profils des bords clivés pour des faisceaux de Bessel (E_p = 12 µJ) à géométrie cylindrique (a-c) et elliptique (d-f). On s'intéresse à la position de la fracture par rapport au plan des faisceau (a,d), à l'allure globale (b,e) et à la rugosité du bord clivé (c,f).

La présence d'une rugosité plus faible permet d'expliquer l'amélioration de la ténacité transverse des bords clivés pour le cas elliptique : il y a moins de points d'amorce de fracture potentielle et le clivage parfait élimine le problème de nanocanaux résiduels qui peut exister avec le cas circulaire. De plus, en revenant aux résultats de l'étude par éléments finis, on remarque qu'en même temps qu'une concentration des contraintes au niveau du sommet de l'ellipse, on assiste également à une réduction des contraintes au niveau du bord long de l'ellipse. Les nanocanaux elliptiques ont alors moins de probabilité d'amorcer une fracture hors du grand axe de l'ellipse.

4.4.1/ APPROCHE NUMÉRIQUE : ÉLÉMENTS FINIS

Pour estimer le facteur de contrainte dans le cas où notre échantillon possède plusieurs ouvertures elliptiques, comme les images MEB nous le montrent (figure 4.5), nous intégrons numériquement par éléments finis la réponse du matériau, afin de simuler l'accumulation de contraintes lors de la flexion appliquée pour faire cliver l'échantillon (figure

4.13.a). Cette approche permet une résolution approchée et locale des lois mécaniques intégrales, sous forme d'équations différentielles solubles à chaque point (nœud) d'un maillage défini en fonction de la géométrie du problème.

Dans notre cas, et comme dans la plupart des cas, le problème réel est complexe à modéliser et possède un coût computationnel important : un modèle réduit est alors nécessaire, en utilisant au mieux les simplifications applicables. Pour notre cas, le grand saut d'échelle entre la taille de l'échantillon (20×20 mm) et celles des nanocanaux (720×360 nm de section, pour un rapport d'aspect supérieur à 150:1) nous oblige à adapter le modèle réduit : le maillage possède une plus forte densité à proximité de la zone d'intérêt et doit être d'autant plus dense que celle-ci est petite.

Le modèle réduit présenté en figure 4.13.b concerne une plaque de 20 × 20 mm de 150 µm d'épaisseur (fidèle à la réalité et compatible avec l'hypothèse de plaque mince), percée de part en part d'un canal dont les dimensions transverses sont multipliées par un facteur 1000. Les points d'appuis de la plaque sont remplacés par deux liaisons pivot en extrémité de plaque. La flexion est appliquée par une force normalisée répartie sur une ligne. L'existence d'un plan de symétrie permet de réduire le nombre de nœuds impliqués dans le maillage, sans pour autant modifier le résultat (figure 4.13.c).

On considère le cas d'un nanocanal cylindrique de 360 nm de diamètre ordinairement, remplacé par un trou de 360 µm dans notre modèle simplifié, que l'on compare au cas d'un trou elliptique de rapport 2:1 et dont le grand axe est placé le long du plan de clivage. Dans les deux cas le maillage utilisé possède 22 points de définition de la section du trou, uniformément répartis pour le cas circulaire et à pas variable dans le cas elliptique (haute densité vers les sommets). Nous nous intéressons à la valeur des contraintes à proximité directe du trou, et particulièrement à la surface inférieure de l'échantillon où la contrainte devrait être la plus importante.

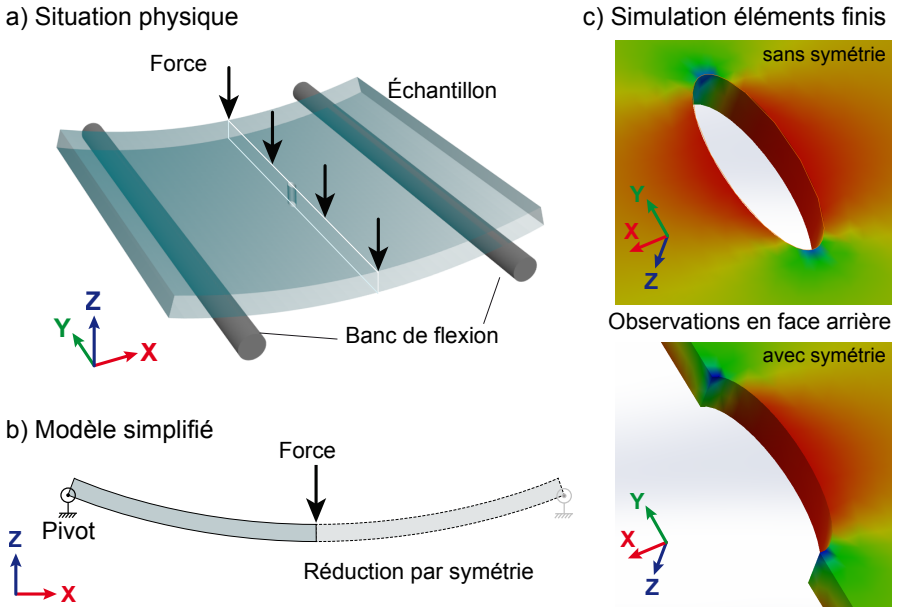

FIGURE 4.13 – Principe de la simulation à éléments finis utilisée : partant du modèle réel de flexion (a), on définit un modèle simplifié (b) permettant un calcul de contrainte au niveau d'un nanocanal. On observe la face arrière, où la contrainte maximal est attendue. Le modèle donne des résultats équivalents avec et sans l'hypothèse de symétrie (c).

On résout alors pour chaque point du maillage en éléments finis la loi de Hooke $\sigma = E\epsilon$ pour laquelle σ représente le tenseur des contraintes, ϵ le tenseur des déplacements (déformations) et E transcrit la réponse du matériau (sous forme scalaire, le module de Young, dans le cas isotrope).

Le tenseur σ décrit l'état de contrainte du matériau et prend la forme suivante :

$$\sigma = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & \tau_{xy} & \tau_{xz} \\ \tau_{yx} & \sigma_{yy} & \tau_{yz} \\ \tau_{zx} & \tau_{zy} & \sigma_{zz} \end{pmatrix} \tag{4.2}$$

dans laquelle les éléments σ_{ii} correspondent aux contraintes dans les trois dimensions $i = \{x, y, z\}$ et les éléments hors diagonaux τ_{ij} représentent les cisaillements $(i, j = \{x, y, z\})$. Il est à noter que dans la mesure où σ est une matrice réelle, on peut trouver un repère dans lequel σ est diagonal. Dans notre cas, la géométrie de la plaque étant imposée, nous conserverons le repère (x, y, z) originel.

Notre étude concerne les forces à l'origine de la séparation en deux de notre échantillon : notre objet d'étude se restreint alors à la valeur de σ_{xx}, correspondant aux contraintes orthogonales au plan de clivage souhaité. Par convention on considère ordinairement pour les composantes σ_{ii} qu'un signe positif correspond à une contrainte extensive et un signe négatif à une contrainte compressive.

La figure 4.14 montre le résultat de simulation obtenu par le module d'éléments finis intégré au logiciel Solidworks™. On y calcule la distribution de contraintes σ_{xx} pour un trou circulaire ou elliptique dans une plaque mince, mise en flexion par une force selon l'axe z. Ceci modélise la situation à laquelle est soumise un perçage isolé dans un échantillon au moment du clivage.

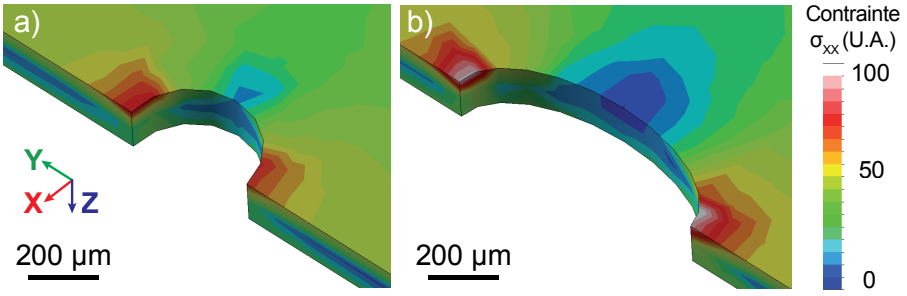

FIGURE 4.14 – Simulations par éléments finis des contraintes σ selon l'axe x à la face inférieure d'une plaque mince soumise à une flexion en z et dont le centre est percé. On compare le cas d'un alésage cylindrique (a) puis elliptique de ratio 2 :1 (b). Une moitié seulement de la plaque mince est montrée et l'échelle correspond aux dimensions d'un nanocanal dans le modèle réduit (échelle 1/1000).

Comme attendues par l'approche analytique utilisée en début de chapitre, les contraintes se localisent principalement selon l'axe y dans les deux cas et présentent une plus forte concentration dans le cas elliptique. De plus, la plus haute valeur atteinte de contraintes est 40% plus importante dans le cas elliptique que pour le cas circulaire : nous retrouvons le rapport attendu par la comparaison des facteurs de concentration de contrainte κ_{circ} et $\kappa_{ell,2:1}$.

Nous remarquons également que le bord long de l'ellipse réduit la concentration de contrainte au niveau du petit axe de l'ellipse : ceci explique la plus grande ténacité

transverse observée après clivage laser par des nanocanaux elliptiques dont le grand axe est orienté le long de la ligne de clivage. Simplement par sa géométrie, l'ellipse joue le double rôle d'aide au clivage et de renforcement du bord clivé.

Cette approche par éléments finis possède évidemment de nombreuses limites, et particulièrement du fait de notre modèle très réducteur : le choix de la liaison pivot est très discutable car la liaison réelle est linéaire-rectiligne ; et comme mentionné précédemment les dimensions du canal ne absolument pas réalistes par rapport au cas des nanocanaux.

4.4.2/ INFLUENCE DES LOBES LATÉRAUX

Du fait de la présence de deux lobes latéraux sur les faisceaux de Bessel elliptiques, nous pouvons nous attendre à un biais sur les interprétations établies précédemment. Ces deux lobes sont capables en effet pour la plus haute énergie (18 µJ) de générer deux nanocanaux eux aussi à section elliptique comme le montre la figure 4.5. Ils se forment à une distance S = 1,7 µm du centre du nanocanal principal et nous pouvons raisonnablement nous poser la question de l'influence de cette proximité, notamment en raison de la distance séparant deux tirs (5 µm) qui est supérieure à la distance S.

Nous réalisons une étude par éléments finis, similaire à celle utilisée précédemment, en ajoutant la présence de canaux latéraux à une distance donnée (figure 4.15). Afin d'observer la distribution de contrainte, nous plaçons les canaux latéraux à des distances intercanaux $S/2$, S et $2S$. La valeur de la contrainte σ_{xx} aux sommets de l'ellipse centrale (A,B) et des ellipses latérales (C,D) nous permet de voir les variations de concentration de contrainte en fonction de l'écartement (table 4.2).

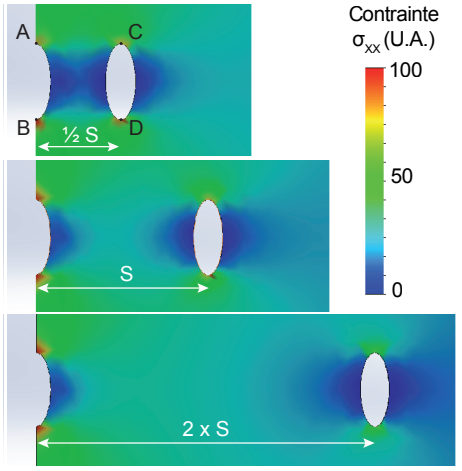

FIGURE 4.15 – Simulations par éléments finis pour différentes distances intercanaux : S = 1,7 µm, $S/2$ et $2S$.

Les cas S et $2S$ montrent une faible influence mutuelle d'un canal sur son voisin : la distribution de σ_{xx} est assez similaire, et ses valeurs aux sommets des ellipses restent très proches à quelques pourcents près. L'ellipse centrale (couple A-B) reste toujours la zone de fracture préférentielle : la contrainte y est au moins 25% plus importante qu'au niveau de ses voisines. En revanche le cas $S/2$ montre une influence plus marquée car la distribution globale de contrainte s'en retrouve modifiée. Néanmoins cette influence reste

Distance intercanaux	$S/2$	S	$2S$
σ_A	76	91	96
σ_B	99	95	99
σ_C	58	69	58
σ_D	75	77	65

TABLE 4.2 – Valeurs en unités arbitraires de la contrainte σ_{xx} aux sommets des nanocanaux elliptiques pour trois distances intercanaux différentes : S/2, S (distance réelle) et 2S.

faible : les valeurs de σ_{xx} restent similaires aux autres cas, hormis au point A.

Les trois cas possèdent un maillage légèrement différent afin de s'adapter à la géométrie. Ceci permet d'expliquer la présence de différences sur la valeur de σ_{xx} entre les couples de points A-B et C-D, qui par symétrie sont censées être identiques. Par exemple, cela est particulièrement visible pour le couple A-B pour le cas $S/2$ ou au niveau du point D pour le cas S (présence sur une maille unique d'une zone de forte contrainte).

Grâce à cette étude, même imparfaite en raison du maillage, nous pouvons alors expliquer la raison d'une fracture préférentiellement guidée par l'ellipse centrale plutôt que par celles générées par les lobes latéraux du faisceau de Bessel elliptique.

4.5/ CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Dans ce chapitre, nous avons pu proposer une méthode d'amélioration d'un procédé de découpe laser haute vitesse. Nous avons optimisé la géométrie des nanocanaux permettant d'induire un plan de clivage et nous avons vu que celle-ci possède une influence significative sur la qualité de la découpe.

Par rapport au cas à géométrie cylindrique, l'utilisation de faisceaux non-diffractants dont le cœur est elliptique favorise de 30% les performances de séparation des éléments à découper. La précision de clivage obtenue est inférieure au micron et garantit une fracture guidée dans 100% des cas. L'état de surface est excellent et augmente ainsi de 30% par rapport au cas des faisceaux de Bessel la ténacité transverse des bords usinés : la rugosité obtenue après clivage permet de s'affranchir de toute étape de polissage post-clivage.

Notre étude se limite à l'influence de la géométrie par comparaison avec des nanocanaux circulaires pour des nanocanaux elliptiques d'assez faible ellipticité. Collins et O'connor [264] ont utilisé des faisceaux gaussiens elliptiques avec un facteur d'aspect proche de 10, permettant de faire monter le facteur de concentration de contrainte à 20 environ (contre 5 dans notre cas). On peut alors légitimement penser à accentuer l'influence du filtrage spatial en élargissant la plage de fréquences spatiales de coupure.

Augmenter la largeur du filtre permet d'allonger le lobe central et d'augmenter le facteur d'aspect de l'ellipse, cependant cette opération conduit à un rendement optique faible : notre filtre, peu sélectif, bloque d'ores et déjà 30% de l'énergie incidente. Plus problématique encore, une section elliptique trop allongée ouvre la porte à un régime non-linéaire plus complexe en perdant la stabilité offerte par les propriétés des faisceaux

de Bessel : l'instabilité de modulation devient non-négligeable et le faisceau se divise en plusieurs filaments.

Un autre type de filtrage a été proposé par Dudutis *et al.* sur la base de notre approche, en utilisant un filtre en secteurs angulaires [278]. L'étude est poussée jusqu'à des échantillons de 1 mm d'épaisseur, clivés par une passe unique haute énergie (1,6 mJ, 300 ps) ou en 5 passes à 18 µJ (10 ps). Pour des impulsions millijoule et en régime picoseconde (10 et 300 ps), des propriétés similaires à celles présentées dans ce chapitre sont mise en avant : le clivage et l'état de surface sont drastiquement améliorés par un faisceau de Bessel à section elliptique plutôt que circulaire. On notera que le filtrage présentant un optimum de clivabilité selon eux est de 25° et correspond exactement au filtrage angulaire équivalent de notre expérience : notre anneau de Bessel se trouve à k_r = 1,1 µm^{-1} et le filtrage appliqué à k_{filt} = 0,5 µm^{-1}, donnant un angle occulté $\theta_{filt} = \arctan\left(k_{filt}/k_r\right)$ = 24,5°.

Une solution à base de mise en forme spatiale sans filtrage serait à privilégier, possiblement à base de SLM de manière à pouvoir optimiser de manière flexible la géométrie du faisceau. Il serait possible d'utiliser une autre classe de faisceaux non-diffractants, dont la zone d'intensité maximale possède une géométrie proche d'une ellipse. C'est le cas des faisceaux de Mathieu qui sont solution de l'équation de Helmholtz [279, 280] et dont le lobe central est elliptique [281, 282]. Les faisceaux de Mathieu commencent à émerger dans la communauté d'usinage laser en faisant justement référence aux travaux menés au cours de cette thèse, et en prenant le nom attractif de "couteaux optiques" ("*optical knives*") [283], censés permettre d'améliorer à l'avenir les procédés de découpe du verre [284].

5

DÉCOUPE DE VERRE DE GRANDE ÉPAISSEUR

Dans ce chapitre, nous cherchons à agrandir la gamme d'épaisseur accessible à la découpe à haute vitesse et par laser du verre. Partant du constat que ce sont les montages optiques utilisés jusqu'alors qui posent les limites du procédé, nous montrons qu'un changement de design optique permet d'étendre les méthodes de clivage par faisceaux de Bessel au domaine du verre d'épaisseur centimétrique. Nous proposons un système à 3 axicons permettant de réaliser un faisceau de Bessel à haut angle et de longueur sub-centimétrique. Nous réalisons alors la preuve de principe du clivage de verre d'épaisseur comprise entre 3 et 10 mm, tout en garantissant un état de surface dont la rugosité typique est proche du micron.

Ce chapitre détaille les méthodes et résultats d'un article publié dans *Applied Physics Letters* [285] et présenté en annexe C.3.

5.1/ VERS DE NOUVELLES GÉOMÉTRIES

Les faisceaux de Bessel ayant montré leur efficacité pour la découpe du verre de plusieurs centaines de microns d'épaisseur [18, 250, 251, 286–289], il est naturel d'envisager leur utilisation pour des épaisseurs de plusieurs millimètres, voire même du centimètre. Cependant dans la pratique, passer du domaine sub-millimétrique au domaine sub-centimétrique ne consiste pas en un simple changement d'échelle. Deux aspects sont à concilier : la distribution d'intensité doit être étendue longitudinalement pour permettre un dépôt d'énergie étendu dans l'épaisseur du milieu, tandis que la densité d'énergie doit être préservée afin de franchir le seuil d'ablation sur une grande profondeur.

Franchir un ordre de grandeur supérieur sur la longueur d'interaction implique alors directement le franchissement d'un ordre de grandeur sur l'énergie que le système de mise en forme peut accepter, tout en impliquant également un besoin de modifier la conception optique du système pour augmenter l'extension longitudinale du faisceau de Bessel.

Ce besoin de compromis nous impose de conserver pour les faisceaux de Bessel des angles coniques forts ($> 20°$), qui permettent un fort confinement transverse de l'intensité au sein du lobe central et de garantir des hautes qualités de clivage [250]. Il nous reste alors à concevoir une géométrie du montage optique permettant de créer une zone d'in-

teraction longue et qui autorise l'utilisation de hautes énergies pour assurer une densité d'intensité longitudinale suffisante pour usiner le milieu.

Dans notre étude, nous nous plaçons dans le cas des angles coniques forts. Les faisceaux de Bessel à angle fort possèdent une meilleure stabilité aux effets non-linéaires à haute énergie [10]. De plus il a été montré pour des plaques de verre d'épaisseur plus faible (1 mm) qu'un usinage par des faisceaux de Bessel à forts angles coniques conduisent à un clivage plus régulier et à une plus faible rugosité des bords clivés que pour des angles coniques faibles [250].

Nous confirmons dans ce chapitre que l'utilisation des faisceaux de Bessel à angle fort permet d'obtenir une haute qualité de clivage du verre : nous parvenons à faire cliver en un passage sous le laser des lames de verre dont les épaisseurs sont identiques et même supérieures à celles présentées dans la littérature jusqu'alors ; et nous atteignons des rugosités faibles et comparables à celle du verre rodé (dépoli).

5.1.1/ LIMITES DES SYSTÈMES TÉLESCOPIQUES

La génération de faisceaux de Bessel à forts angles passe le plus souvent par l'utilisation d'un télescope de grandissement $1/M$ (figure 5.1), dont la fonction est de multiplier par le facteur M l'angle d'un faisceau de Bessel primaire de faible angle, généré par un axicon [70, 251, 265, 290] ou un SLM [69, 102, 288].

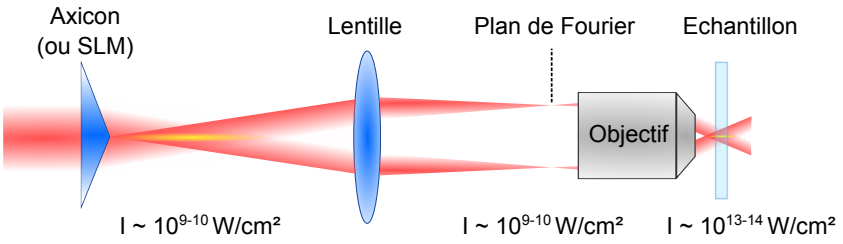

FIGURE 5.1 – Illustration d'un arrangement télescopique permettant à partir d'un faisceau de Bessel primaire de bas angle de générer un faisceau de Bessel à haut angle atteignant des intensités permettant l'ablation. Les intensités typiques mises en jeu dans le montage optique sont indiquées pour le cas d'un angle conique du faisceau Bessel secondaire de 26° pour des impulsions de 1 ps et 10-100 µJ.

Ces systèmes permettent une mise en forme de grande qualité mais posent des limitations pour plusieurs raisons :

- à angle conique fixe, la longueur du faisceau de Bessel est liée au diamètre de pupille des éléments du système [45, 47]. La génération d'un long faisceau de Bessel à fort angle grâce à un arrangement télescopique implique des optiques de grand diamètre.
- pour obtenir un angle fort, on choisit généralement M grand : on emploie alors une première lentille de longue focale (typiquement 1 m) et une seconde de seulement quelques millimètres de focale. Comme la distance de travail du système est intrinsèquement liée à la distance focale de la seconde lentille du télescope, elle est généralement sub-centimétrique et par conséquent peu adaptée pour l'usinage de milieux épais.
- des points chauds existent dans le montage télescopique (Bessel primaire et plan de Fourier confocal) et les intensités qui y sont atteintes peuvent être suffisantes

pour induire des distorsions dans le faisceau, particulièrement dans le cas des régimes hautes énergie et à haut taux de répétition (effets de lentille thermique).

Ce dernier point est de loin le plus critique lorsqu'on envisage la génération d'un long faisceau de Bessel. La focalisation dans le plan de Fourier d'un faisceau de Bessel prend la forme d'un anneau, dont l'intensité augmente linéairement à la fois avec l'énergie à l'entrée du système mais aussi avec la longueur L_B [47].

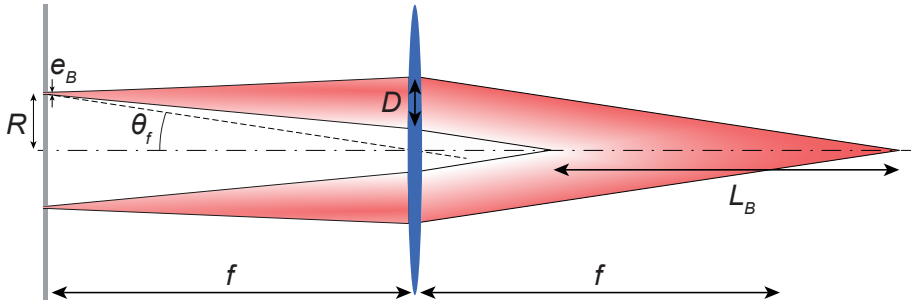

FIGURE 5.2 – Formation d'un faisceau de Bessel par un filtrage en anneau dans le plan de Fourier d'une lentille. La longueur du faisceau de Bessel L_B varie avec l'inverse de l'épaisseur de l'anneau e_B.

Considérons la transformation de Fourier par une lentille de distance focale f d'un anneau de rayon R et de largeur e_B généré par une fente annulaire (figure 5.2) : dans l'hypothèse paraxiale, la diffraction en espace libre donne au niveau de la lentille $D \approx \frac{\lambda f}{e_B}$ et la focalisation par la lentille donne $L_B = \frac{D}{\tan\theta} \approx \frac{Df}{R}$. Par conséquent la relation entre e_B et L_B est donnée par : $L_B \approx \frac{\lambda f}{e_B R}$.

Dans ce chapitre, on souhaite faire progresser la longueur L_B d'un facteur 100 par rapport au cas courant. Par conséquent, l'épaisseur e_B est réduite également d'un facteur 100. De plus, pour conserver la densité d'énergie déposée au cœur du faisceau, ceci implique de multiplier par 100 l'énergie d'entrée du système. Au final, l'intensité de l'anneau dans l'espace de Fourier est donc 10^4 fois supérieure à la situation d'origine.

Le plan de Fourier d'un système télescopique se situe ordinairement dans l'air [1], dont la réponse non-linéaire est faible ($n_2^{air}/n_2^{glass} \approx 10^{-3}$ [184, 291]) ce qui permet raisonnablement de négliger toute distorsion dans la plupart des cas. Cependant nous franchissons ici 4 ordres de grandeur en intensité : l'approximation de linéarité de la réponse de l'air devient caduque.

Pour donner un ordre de grandeur, la génération du faisceau de Bessel à 26° utilisé dans le chapitre 4 se fait à des énergies entre 6 et 18 µJ pour des impulsions de ≈100 fs. Dans le plan de Fourier de l'objectif utilisé pour la focalisation, l'intensité atteint alors $10^9 - 10^{10}$ W/cm^2. En supposant que cela est possible dans les mêmes conditions, la réalisation d'un faisceau de Bessel similaire dont la densité linéique de puissance est conservée constante mais dont la longueur est multipliée par 100 engendre une intensité

1. Il arrive que certains objectifs de microscope à grande ouverture numérique se comportent comme de systèmes épais dont le plan focal arrière se trouve *dans* une lentille ou une colle adaptatrice d'indice entre deux lentilles. Dans ce cas, le problème discuté dans ces deux paragraphes est encore plus critique, du fait de la plus forte réponse non-linéaire des milieux denses.

de $10^{13} - 10^{14}$ W/cm^2, pour laquelle la réponse non-linéaire de l'air n'est plus négligeable et peut même suffire à ioniser localement l'air.

Même en faisant grossièrement l'hypothèse que l'air n'induit pas de distorsion non-linéaire, l'intensité au niveau des optiques pose problème. Les courtes distances focales employées pour la deuxième lentille des télescopes à fort grandissement tendent à placer le plan de Fourier à proximité directe de la première surface de la lentille de focalisation. Bien que partiellement défocalisée (le plan de Fourier est rarement à la surface même de la lentille), la distribution d'intensité reste globalement confinée spatialement et est susceptible de générer des effets non-linéaires dans le milieu constituant la lentille. Pour des hautes énergies, la possibilité d'endommagement permanent des optiques doit même être prise en compte [290].

En pratique, l'interaction au sein de la seconde lentille constitue une limite souvent plus basse que celle provenant de la réponse non-linéaire de l'air. L'image présentée en figure 5.3 en témoigne et montre le groupe arrière d'un objectif utilisé comme seconde lentille dans un télescope : l'intensité au niveau de la lentille était trop importante et les impulsions ont endommagé profondément l'objectif.

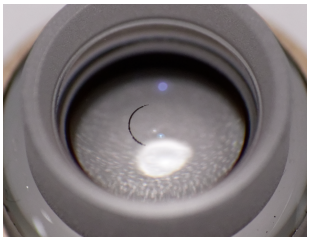

FIGURE 5.3 – Groupe arrière d'un objectif de microscope $\times$ 20 endommagé : une portion d'anneau est gravée à la surface de la première lentille du groupe (demi-cercle noir) et rend l'objectif inutilisable.

5.2/ SYSTÈME À TROIS AXICONS

De tous les constats établis précédemment ressort alors le cahier des charges à respecter. Le système optique à réaliser doit être en mesure de générer un faisceau de Bessel à hauts angles ($\theta_f > 20°$) sur une grande longueur ($L_B \in [1 - 10]$ mm) et avec une distance de travail d_w de l'ordre du centimètre. Et pour une application à l'usinage, il doit de plus être capable de supporter au minimum des énergies de l'ordre de 1-10 mJ.

Face aux nombreuses limitations mises en avant dans le paragraphe précédent, deux solutions techniques sont éliminées d'emblée : 1^o l'utilisation d'un arrangement télescopique à deux lentilles convergentes est exclue ; 2^o la génération d'un faisceau de Bessel ne peut se faire grâce à un SLM, car la profondeur de modulation accessible aux cristaux liquides ne permet pas d'obtenir des angles forts. Nous envisageons alors une solution purement à base d'axicons.

Nous trouvons dans la littérature l'existence d'une telle solution, formée à base de 3 axicons convergents [292] et présentée en figure 5.4. Le premier axicon génère un faisceau de Bessel primaire. Le second collecte l'onde conique divergente qui existe au delà de

la zone d'interférence, et la "collimate"[2] en lui donnant la forme d'un anneau dont le diamètre n'évolue pas au cours de la propagation. Les diamètres interne et externe de l'anneau dépendent uniquement de la distance entre les deux premiers axicons et du diamètre du faisceau d'entrée. Enfin le dernier axicon "focalise"[3] cet anneau et produit le faisceau de Bessel final, à bonne distance de sa pointe.

Cette solution élimine le problème de la distance de travail fixe et trop courte des systèmes télescopiques : on obtient ici un ajustement continu de la distance de travail d_w sans changer l'angle ni la longueur du faisceau de Bessel généré [292], tout en permettant à d_w d'atteindre des valeurs centimétriques. Ce montage a été notamment utilisé sous forme miniaturisée pour des applications en Tomographie à Cohérence Optique (*OCT*) [55], permettant de profiter de la compacité du système et de sa longue distance de travail. Ce même montage a démontré de bons résultats sur une application dans l'usinage de verre épais [157] : il permet notamment de générer par tir unique des modifications à très haut rapport de forme (>1:3800) sur des distances multi-millimétriques.

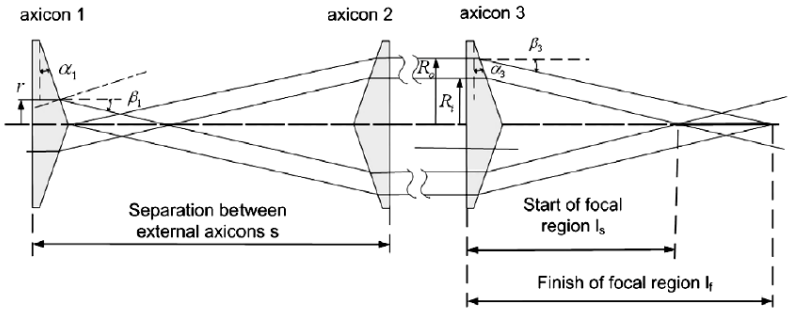

FIGURE 5.4 – Montage proposé par Chebbi *et al.* [292] et appliqué par Bergner *et al.* à l'usinage du verre de grande épaisseur [157]. Image tirée de [292].

Bien que résolvant le problème de la distance de travail, cette solution conserve l'inconvénient majeur de posséder une zone de focalisation intermédiaire, située entre les deux premiers axicons et sous la forme d'un faisceau de Bessel primaire. La plage d'énergies accessibles à ce système est donc bornée, sans quoi les effets non-linéaires excités au sein du faisceau de Bessel primaire engendrent des distorsions sur le faisceau de Bessel secondaire.

Il est à noter que le choix des axicons dans l'article de Bergner *et al.* est assez critique : les trois axicons du dispositif dédié à l'ablation laser sont choisis avec le même fort angle (20°, donnant un faisceau de Bessel d'angle θ_f = 9,7°). Les deux faisceaux de Bessel primaire et secondaire sont identiques du fait des angles égaux : le faisceau de Bessel primaire est donc tout aussi susceptible de générer des effets non-linéaires que son jumeau.

2. Par analogie avec l'effet d'une lentille sur un point source, restituant une collection de faisceaux possédant le même vecteur d'onde.

3. Nouvelle analogie avec le cas d'une lentille, pour signifier la création d'une zone de forte intensité.

5.2.1/ UNE NOUVELLE DISPOSITION POUR S'AFFRANCHIR DES LIMITES EN ÉNERGIE

Nous proposons ici l'utilisation de trois axicons dans une configuration proche de celle employée dans l'exemple précédent. La différence majeure est l'utilisation d'un axicon concave comme premier élément (axicon dont l'angle conique est par convention pris comme négatif). Le deuxième axicon possède un angle complémentaire au premier et permet de réaliser une sorte de télescope galiléen en géométrie conique. De cette manière, le profil d'intensité en sortie du deuxième axicon prend la forme d'un anneau dont les diamètres externe et interne varient linéairement avec la distance d entre axicons.

Ce couple d'axicons réalise une fonction optique identique à celui du montage de Chebbi *et al.* et permet d'ajuster librement la distance de travail. Le véritable gain se situe dans l'absence de zone de focalisation intermédiaire, ce qui nous affranchit de toute limite haute d'énergie.

Nous réalisons une seconde différence de conception et qui concerne le dernier axicon. Lorsqu'on utilise un axicon dont la pointe est située dans le sens de propagation du faisceau, le faisceau émergeant de l'axicon n'existe qu'à la condition qu'il n'y ait pas réflexion totale interne. Il existe donc une limite haute à l'angle de l'axicon utilisé. Dans le cas de la silice fondue (n_{ax}=1,45), l'angle maximum est de l'ordre de 43,6°. Le placement de l'axicon avec la pointe dirigée vers la source permet d'utiliser un axicon dont l'angle excède cette valeur : l'axicon utilisé ici possède un angle conique β = 45°.

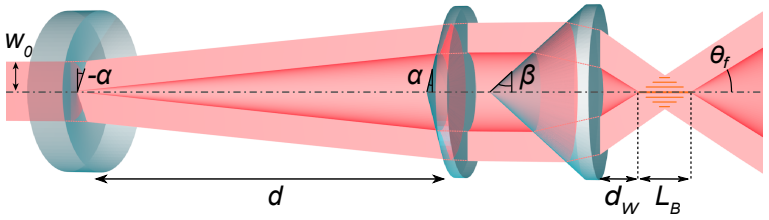

FIGURE 5.5 – Schéma de principe du montage à 3 axicons. Les deux premiers axicons d'angle $\pm\alpha$ = 10°, séparés de la distance d, génèrent un anneau qui est ensuite focalisé par le troisième axicon d'angle β = 45°. Le faisceau de Bessel de longueur L_B se forme après une distance d_w et possède un angle θ_f.

En observant la géométrie du système (figure 5.5), on peut remarquer que l'énergie est répartie sur de larges surfaces au niveau des optiques, car sans focalisation à un endroit autre que le faisceau de Bessel. La seule limite en énergie du système est alors liée aux traitements de surface des optiques (anti-reflets...), qui peuvent supporter des fluences de l'ordre du J.cm^{-2}. Notre dispositif est donc théoriquement en mesure de mettre en forme des faisceaux de Bessel dont l'énergie peut atteindre le joule [4].

4. On remarquera alors, en prenant en compte les valeurs numériques du système obtenues par la suite, que l'intensité d'un tel faisceau peut atteindre 10^{18}W.cm^{-2} dans la zone d'interférence de Bessel.

5.2.2/ FAISCEAUX DE BESSEL À HAUTS ANGLES, LONGUE DISTANCE DE TRAVAIL ET LONGUE ZONE D'INTERACTION

Dans cette partie, nous remontons aux caractéristiques principales du système par une succession de calculs d'angles de réfraction au long de la propagation du faisceau. Nous déterminons l'angle du faisceau de Bessel θ_f dans l'air en fonction de l'angle conique du dernier axicon, et nous calculons la distance de travail d_w et la longueur du faisceau L_B de notre dispositif.

Les détails de calcul sont fournis en annexe B et nous en reportons ici uniquement les résultats principaux, afin de faciliter la lecture.

L'angle θ_f est seulement relié à l'angle conique β et l'indice de réfraction n_{ax} du dernier axicon, il s'exprime sous la forme :

$$\theta_f = \arcsin\left(n_{ax}\sin\left(\beta - \arcsin\left(\frac{\sin\beta}{n_{ax}}\right)\right)\right) \tag{5.1}$$

Notre axicon possède un angle β = 45° et un indice n_{ax} = 1,45. L'angle du faisceau de Bessel dans l'air est donc $\theta_f(n{=}1)$ = 23,3°. On note que pour son application à la découpe de verre (n=1,5), l'angle de Bessel dans le milieu sera $\theta_f(n{=}1{,}5)$ = 15,3°.

La distance de travail impose des contraintes sur la distance d qui ne doit pas être trop faible au risque de faire former le faisceau de Bessel *au sein* du dernier axicon. L'expression analytique de d_w permet de voir apparaître une relation linéaire entre d et d_w :

$$d_w = \frac{d\alpha(n_{ax}-1)\,(1+\tan\beta\tan\gamma) - e_{ax}\tan\gamma}{\tan\theta_f} \tag{5.2}$$

dans laquelle $\gamma = \beta - \arcsin\left(\frac{\sin\beta}{n_{ax}}\right)$ représente l'angle des faisceaux dans le dernier axicon. En pratique on souhaite que la distance de travail d_w soit la plus grande possible, sans que le faisceau ne soit coupé par les optiques. On se place à d = 9,8 cm, distance pour laquelle le faisceau tangente le diamètre extérieur des optiques. Dans cette configuration, la distance de travail d_w est de 11,2 mm.

Enfin, nous calculons la longueur du faisceau de Bessel L_B pour les conditions énoncées précédemment :

$$L_B = \frac{w_0(1+\tan\beta\tan\gamma)}{\tan\theta_f}. \tag{5.3}$$

Compte tenu de l'angle du dernier axicon et du rayon w_0 du faisceau à l'entrée du système ($2w_0$ = 7,5 mm), la longueur maximale du faisceau de Bessel que l'on peut obtenir est L_B = 11,2 mm. Il est possible de réduire à volonté la longueur du faisceau grâce à la dépendance linéaire de L_B en w_0 : en plaçant un diaphragme à l'entrée du système on peut ajuster la longueur du faisceau sans pour autant changer la distance de travail.

5.2.3/ IMPLÉMENTATION EXPÉRIMENTALE ET GESTION DES IMPERFECTIONS

Les trois axicons sont montés dans un système en cage, pour former un monobloc une fois alignés relativement les uns par rapport aux autres. L'alignement du système se

fait grâce à deux montures de translation (x, y) permettant une déplacement relatif des axicons entre eux, et une monture 4 axes (x, y, θ, ϕ) qui nous sert à aligner et positionner le montage complet sur l'axe de propagation du faisceau incident.

Une photographie de l'ensemble est présentée en figure 5.6, montrant la cage et les trois axicons, ainsi que le faisceau laser femtoseconde mis en évidence par une exposition longue dans un milieu diffusant.

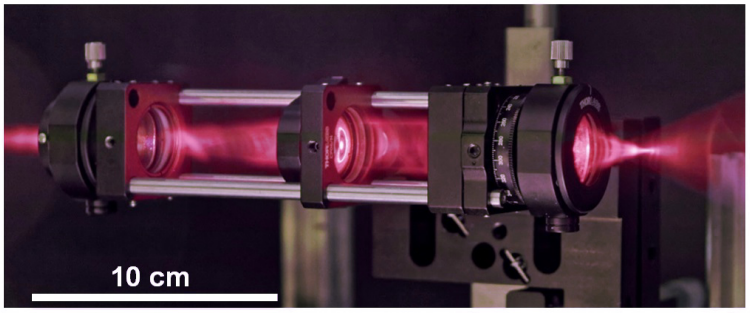

FIGURE 5.6 – Photographie du montage à 3 axicons. Le faisceau laser est mis en évidence par diffusion durant une exposition longue. Le faisceau de Bessel se forme à la droite de l'image.

Comptant seulement trois axicons, le montage final est de conception simple et présente l'avantage d'être très compact en comparaison des méthodes présentées précédemment dans ce manuscrit (environ 1,5 m de long pour le montage avec SLM et 60 cm pour le montage utilisé en première partie de ce chapitre). Notre système à 3 axicons possède un encombrement total de $18 \times 5 \times 5$ cm^3, ce qui représente un important gain d'espace comparativement aux autres systèmes, tout en augmentant de deux ordres de grandeur les capacités d'usinage associées.

Cependant, ce système possède également quelques imperfections dont il est nécessaire de tenir compte, sous peine d'en endommager les composants.

Le point critique dans la qualité d'un axicon convexe repose sur la fabrication d'un profil parfaitement conique même à proximité de l'axe du cône, c'est-à-dire au niveau de la pointe de l'axicon. En général, la pointe possède un profil arrondi et présente parfois une section non-circulaire (ellipticité). Ce problème, bien que connu [293] et pouvant même être pris comme un avantage pour certaines situations d'usinage [265, 275], est ici évité par la géométrie du système : les pointes des deux axicons convexes ne sont pas utilisées.

En revanche, le centre de l'axicon concave n'est pas évité et constitue le point faible majeur de notre système. La production d'axicons concaves de haute qualité est en effet très complexe, du fait même de leur méthode de fabrication. Il en résulte une zone centrale, souvent de plusieurs millimètres de diamètre, dans laquelle le profil ne peut suivre celui d'un cône. En pratique, un axicon négatif possède souvent en son centre un alésage cylindrique ou un profil arrondi.

L'axicon concave dont nous disposons possède un profil courbe en son centre (zone de 1 mm de diamètre), le transformant localement en lentille asphérique divergente. La conséquence est la dispersion angulaire des rayons optiques provenant de cette zone. Sur la figure 5.7, la zone affectée par le profil courbe est représentée en gris ; on y montre l'effet de la courbure sur les projections longitudinale k_z et transverse k_r du vecteur d'onde

k suivant la position radiale r sur l'axicon.

Le profil curviligne a pour asymptote la génératrice du cône ce qui signifie que nous pouvons réaliser une opération de filtrage passe-haut : on ne laisse progresser que les rayons émergents de la partie conique de l'axicon. Il suffit pour cela de placer un disque de rayon $r_0(d) \approx d\alpha(n_{ax} - 1)$ juste avant le second axicon pour éliminer toutes les contributions non-coniques du premier axicon.

Le tracé de rayon en bas de la figure 5.7 montre l'effet du filtrage spatial : en l'absence de filtrage, on laisse interférer les rayons tracés en pointés, conduisant à la formation d'un faisceau de Bessel au sein du dernier axicon. Le filtrage agit donc comme un garant de la protection du dernier axicon. Dans notre montage, ce disque est une pastille métallique de 15 mm de diamètre et à surface convexe [5].

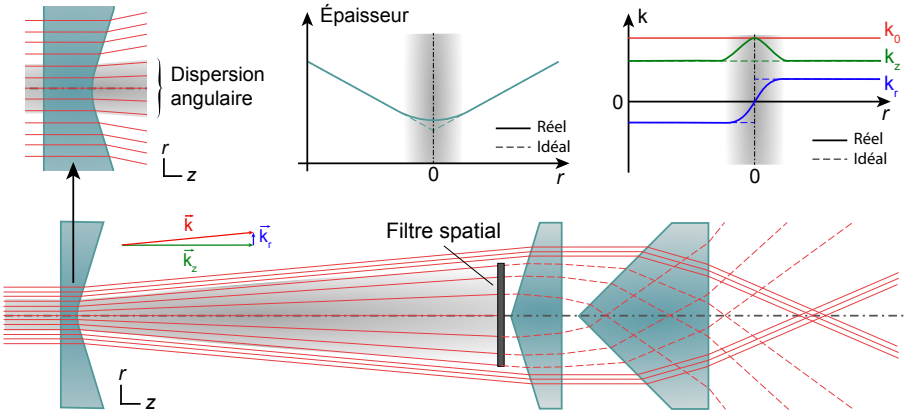

FIGURE 5.7 – Effets d'une pointe arrondie sur un axicon : une dispersion angulaire est observée pour les rayons passant à proximité du centre de l'axicon (zone grise). L'épaisseur de l'axicon réel ne varie pas selon profil théorique en $|r|$ et les projections de k, k_r et k_z sont donc pas des constantes de r. La solution consiste à placer un filtre spatial dans le système, pour éliminer les rayons dispersés angulairement qui conduisent à une focalisation interne au 3^e axicon (en traits pointillés).

Considérant l'ensemble de pertes (interfaces, filtrage spatial...), notre système possède une efficacité de 62 %. L'énergie par impulsions est de 4 mJ après notre contrôleur de puissance : nous pouvons espérer une énergie de 2,5 mJ au niveau du faisceau de Bessel.

5.3/ CARACTÉRISATION DU FAISCEAU DE BESSEL

L'approche géométrique et les tracés de rayons donnent une bonne estimation des propriétés du faisceau de Bessel espéré dans le cas idéal. Nous mesurons dans cette partie le profil d'intensité réel du faisceau de Bessel formé, et nous extrayons les valeurs expérimentales de la distance de travail d_w et la longueur exploitable du faisceau de Bessel L_B.

5. Les énergies en jeu nous engagent à éviter les éléments absorbants pour bloquer le faisceau : on préférera des solutions réflectives ou à diffusion.

La mesure du profil d'intensité se fait dans un premier temps dans le régime linéaire, à très faible intensité, puis dans le régime non-linéaire dans l'air en augmentant petit à petit l'énergie de manière à observer la stabilité du profil d'intensité face aux effets non-linéaires.

La technique d'imagerie utilisée reste la même que dans les chapitres précédents : un couple microscope-caméra calibré vient imager plan par plan le profil du faisceau, de manière à reconstruire la cartographie volumique d'intensité.

5.3.1/ SYSTÈME D'IMAGERIE

Le système d'imagerie est un arrangement télescopique, collectant l'énergie après le faisceau de Bessel. Il existe alors la même problématique que pour la formation du faisceau de Bessel : nous devons être extrêmement vigilants à la position de plans de focalisation et des points chauds dans le système d'imagerie.

Le laser est utilisé en régime continu, au taux de répétition nominal, et la caméra intègre dans le temps sur plusieurs dizaines d'impulsions. Nous sommes donc en régime cumulatif, et toute amorce de défaut créé par une impulsion unique sur une optique entraine de manière certaine l'endommagement profond de cette dernière par les impulsions suivantes par absorption successive. En régime linéaire le problème ne se pose évidemment pas, mais dans la mesure où nous souhaitons faire une cartographie d'intensité à haute énergie (plusieurs mJ), nous devons adapter le dispositif pour prévenir tout dommage optique.

La première conséquence face à la longueur du faisceau de Bessel à mesurer est que nous ne pouvons pas garder un objectif de microscope à forte ouverture numérique pour la collection du faisceau. Par exemple la distance de travail des objectifs utilisés dans les chapitres précédents est réputée longue (1 mm), mais est bien insuffisante pour permettre de faire l'image du plan du début du faisceau de Bessel sans que la fin de ce même faisceau ne se forme *dans* l'objectif, causant un possible endommagement.

Nous remplaçons l'objectif $\times$ 50 d'ouverture numérique 0,8 utilisé jusqu'alors par un doublet formé par deux lentilles de 6 cm de longueur focale : la longueur focale du doublet est de 3,6 cm. Ce doublet possède un diamètre de 2 pouces, pour obtenir une ouverture numérique supérieure à celle du cône d'interférence ($NA_{doublet}$ = 0,58 > NA_{Bessel} = 0,44).

Afin de conserver un échantillonnage suffisant du profil transverse du faisceau de Bessel, la seconde lentille possède une grande longueur focale (1 m) et la taille des pixels de caméra associée au télescope est choisie petite (2,2 µm). On obtient un grandissement mesuré M = 27,4 conduisant à une résolution du système hors diffraction de 80 nm/pixel. La caméra est protégée par des densités optiques réflectives, dont l'atténuation est adaptée en fonction de l'énergie (atténuation entre 20 et 50 dB).

Nous reconstituons le profil d'intensité à trois dimensions en imageant plan par plan le faisceau formé, en déplaçant le système d'imagerie le long de son axe de propagation. Une platine de translation micrométrique et motorisée permet ce déplacement avec une résolution de 1 µm. Cette même platine fait partie du système de positionnement à 3 axes et est utilisée également par la suite pour porter les lames de verre à usiner : une monture magnétique permettant de passer de la configuration d'imagerie à celle d'usinage.

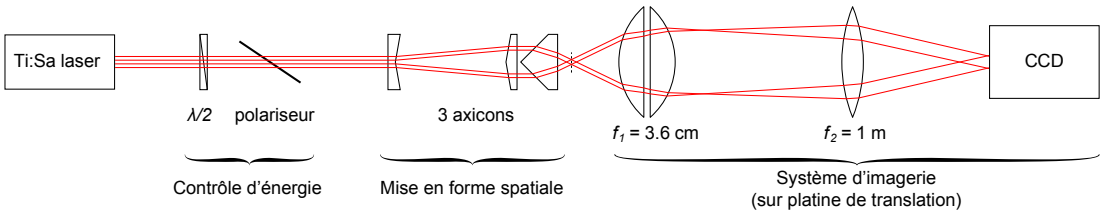

FIGURE 5.8 – Vue schématique du montage réalisé pour caractériser le faisceau en régimes linéaire et non-linéaire. La ligne pointillée représente le plan d'imagerie, qu'on déplace grâce à une platine de translation portant l'ensemble du système d'imagerie.

5.3.2/ RÉGIMES LINÉAIRE ET NON-LINÉAIRE

Le laser amplifié utilisé ici possède une puissance moyenne de 5 W et un taux de répétition de 1 kHz. Le spectre émis autour de 800 nm correspond à une durée d'impulsion de $\tau_{p,FT}$ = 30 fs (limitée par la transformée de Fourier). La mesure par autocorrelation de la durée d'impulsion réelle à la sortie du laser nous donne τ_p = 43 fs au plus court. Le compresseur interne à l'amplificateur nous permet d'étirer l'impulsion pour atteindre le régime picoseconde (maximum : 6,2 ps), propice à la découpe du verre. Nous choisissons de travailler avec la durée d'impulsion la plus courte possible, de manière à maximiser l'effet des interactions non-linéaires : ceci permet de tester la robustesse de notre faisceau à ces effets, en se plaçant dans le pire des cas.

L'énergie par impulsion est contrôlée dans notre système par une lame demi-onde placée devant un polariseur mince à l'angle de Brewster. La plage d'énergie accessible à niveau du faisceau de Bessel est comprise entre 1 µJ et 2,5 mJ. Nous choisissons pour le régime linéaire une énergie de 12 µJ, pour éviter de se placer à l'extinction par le polariseur[6]. Cette énergie correspond à une intensité maximale de l'ordre de 10^{13} W.cm^{-2} au cœur du lobe central. Dans l'air, cette intensité peut raisonnablement être considérée comme linéaire, du fait de la faible réponse non-linéaire de l'air.

On représente en figure 5.9 les profils d'intensité obtenus pour différentes énergies croissantes entre 12 µJ (régime linéaire) et 1 mJ. Le régime linéaire permet de comparer nos estimations géométriques avec le profil réel du faisceau. La longueur du faisceau L_B dépasse 8 mm dans l'air, ce qui nous permet d'espérer créer des nanocanaux traversant de part en part une plaque de verre de 10 mm d'épaisseur. Le plan z = 0 mm de la figure 5.9 se trouve 11 mm après la face plane du dernier axicon.

Le lobe central possède un diamètre à mi-hauteur de 740 nm (FWHM) : le rapport d'aspect du faisceau excède 1:10 000, reléguant ainsi à deux ordres de grandeur la longueur des faisceaux de Bessel employés dans les chapitres précédents.

Le faisceau conserve un lobe central homogène et régulier tout au long de la propagation ; les lobes latéraux restent également très stables et parallèles au lobe central. Ceci témoigne de la grande qualité du faisceau formé, et *in extenso* de la bonne qualité des axicons.

En augmentant l'énergie, nous remarquons que le faisceau ne subit aucune distorsion et reste similaire à lui-même sur l'ensemble des profils d'intensités présentés en figure 5.9. Le faisceau reste donc stable dans l'air en régime non-linéaire, et même à des intensités

6. Travailler avec le faisceau de fuite d'un polariseur croisé conduit à travailler avec un faisceau dont l'état de polarisation n'est pas clairement connu.

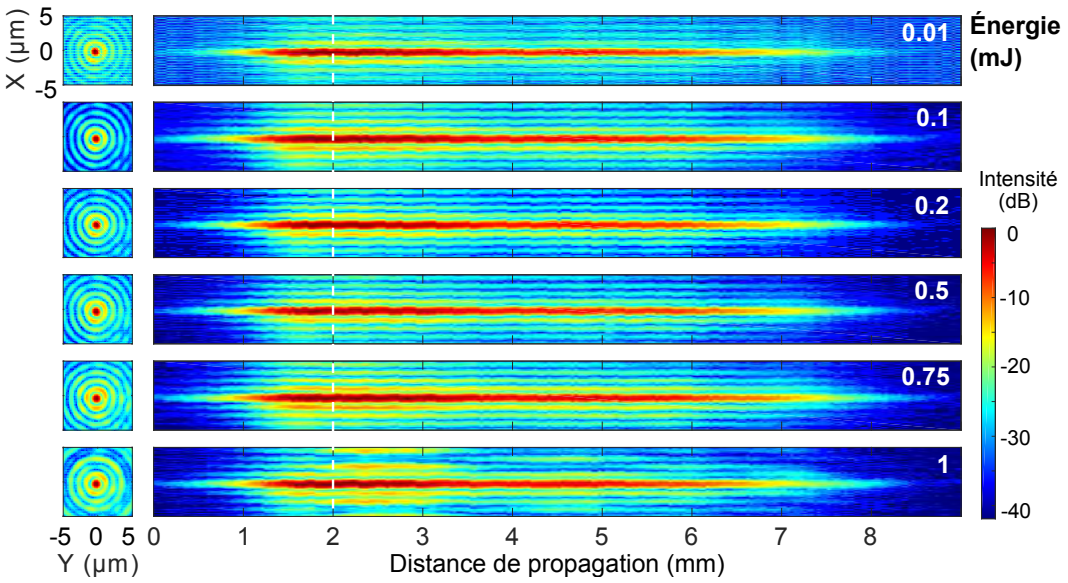

FIGURE 5.9 – Profils d'intensité du faisceau de Bessel généré par le système à 3 axicons, tracés en échelle logarithmique pour 6 énergies différentes entre 12 µJ et 1 mJ. Les sections transverse XY sont prises au niveau de la ligne pointillée blanche tracée sur les profils longitudinaux, dans le plan où l'intensité est maximale.

supérieures à 2.10^{15} W.cm^{-2} atteintes dans le cas E_p = 1 mJ.

On peut cependant remarquer une légère différence entre les cas 0,75 et 1 mJ, en particulier au niveau du 4^e lobe latéral. Celle-ci provient de l'endommagement des densités réflectives au niveau de la caméra : bien que le grandissement du système optique réduise l'intensité d'un facteur $M^2 = 750$, les intensités au niveau de la caméra restent suffisantes pour usiner la couche métallique des densités de protection. La mesure des profils d'intensités est donc limitée par le système d'imagerie à $E_p < 1$ mJ.

5.3.3/ FORMATION DE PLASMA DANS L'AIR À ÉNERGIE MAXIMALE

Afin de vérifier la bonne tenue au flux du dispositif à 3 axicons, nous retirons le système d'imagerie et utilisons l'énergie maximale accessible à notre couple lame demi-onde/polariseur. L'énergie maximale accessible est de 2,5 mJ après le dernier axicon. À cette énergie, nous n'observons aucun problème dans le montage à 3 axicons : l'absence de point chaud dans la géométrie du système autorise sans problème l'utilisation d'impulsions millijoule.

À 2,5 mJ et pour une impulsion de 43 fs (on néglige ici la dispersion induite par les trois axicons), l'intensité maximale atteinte au sein du faisceau est estimée à $5,5.10^{15}$ W.cm^{-2}. Nous remarquons que l'intensité est suffisante pour que l'air soit ionisé au niveau des lobes centraux du faisceau de Bessel : un plasma luminescent longiligne de 8 mm de long se forme après le dernier axicon, à 11 mm de sa dernière surface.

La formation de plasma n'a lieu qu'au sein du faisceau de Bessel, lieu de l'interaction et d'intérêt pour l'usinage à venir. Le profil du plasma visible suit parfaitement l'allure des profils d'intensité présentés en figure 5.9 : il semble qu'à 2,5 mJ, nous ayant toujours une

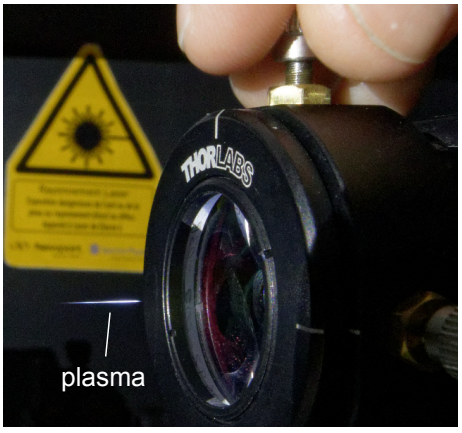

FIGURE 5.10 – Formation d'un plasma luminescent de 8 mm de longueur dans l'air à E_p = 2,5 mJ et pour des impulsions de 43 fs à l'entrée du système.

absence de distorsions dues à des effets non-linéaires.

Lorsqu'on étire l'impulsion avec le compresseur à réseaux de l'amplificateur, le plasma disparaît par chute de la puissance crête. En observant l'intensité de la luminescence plasma, nous avons alors un critère indirect d'optimisation de la durée d'impulsion au niveau du faisceau de Bessel en précompensant la dispersion des optiques.

5.4/ APPLICATION AU CLIVAGE DU VERRE DE GRANDE ÉPAISSEUR

Notre système supporte des énergies millijoule et le faisceau formé est robuste aux effets non-linéaires, de longueur sub-centimétrique et à plus d'un centrimètre des optiques. Notre cahier des charges est respecté et l'ensemble des conditions sont réunies pour permettre la création de nanocanaux réguliers et leur application au clivage du verre.

Nous disposons de plaques de verre de 0,15 à 10 mm d'épaisseur, que nous réduisons par clivage mécanique (roulette diamant puis flexion) en échantillons de 10 $\times$ 10 cm^2, dont les dimensions sont compatibles avec le porte échantillon de notre expérience. Les échantillons sont exposés au laser sous différentes conditions d'illumination (durée d'impulsion, vitesse de translation...) puis transférés sur un banc de flexion à 3 points pour clivage. Contrairement à notre étude précédente concernant l'influence de la géométrie des nanocanaux, la force nécessaire au clivage n'est pas mesurée : les comparaisons se font uniquement en termes de qualité de clivage.

Nous observerons particulièrement l'allure des bords clivés en macrophotographie et sous un profilomètre optique pour mesurer leur rugosité de surface. Enfin, une fois la preuve de principe de clivage de verre épais faite, nous verrons une première application en démonstration de principe, consistant à découper des carrés de 3 cm de côté dans différentes épaisseurs de verre.

5.4.1/ DÉMARCHE ET PREUVE DE PRINCIPE

L'espace des paramètres accessibles dans notre expérience comprend 4 degrés de liberté principaux : 1^o durée et 2^o énergie des impulsions laser, 3^o vitesse de translation et

4º position relative de l'échantillon au faisceau.

Afin de réduire l'espace des paramètres et converger plus rapidement vers un usinage en mesure de faire cliver du verre épais, nous utilisons la connaissance *a priori* tirée de nos précédents résultats obtenus pour le clivage du verre mince :

- le clivage est plus aisé pour des hautes énergies par impulsion ;
- les grandes durées d'impulsion favorisent le clivage ;
- les nanocanaux doivent croiser la face de sortie de l'échantillon et s'étendre sur un maximum de profondeur dans le milieu ;
- l'espacement inter-canal semble être optimal vers 5 µm.

Notre étude ayant pour but la seule démonstration de principe et non l'optimisation du procédé, nous décidons de procéder par essais et améliorations successifs de manière à converger vers une solution efficace pouvant correspondre à un optimum, même local. Par la suite nous travaillons à l'énergie maximale disponible, c'est-à-dire 2,5 mJ au niveau de l'échantillon.

Le régime picoseconde a été exploré autour de trois durées d'impulsions, mesurées en amont du système à trois axicons : 2, 4 et 6 ps. Nous ne sommes jamais parvenus à faire cliver des échantillons usinés en régime femtoseconde (essais à 43, 100 et 300 fs), quelles que soient les valeurs des autres paramètres.

Nous commençons par répéter l'expérience de clivage pour des échantillons de 150 µm d'épaisseur, à la manière des expériences conduites en début de ce chapitre. Ceci est expérimentalement bien plus simple qu'auparavant car la question du positionnement du faisceau par rapport à l'échantillon ne se pose plus puisque le faisceau possède une longueur 50 fois plus importante que l'épaisseur de l'échantillon. En régime picoseconde ($\tau_p \geq$ 2,2 ps), nous retrouvons instantanément des résultats similaires à ceux obtenus avec des faisceaux de Bessel courts : le clivage est très aisé et la force pour parvenir à faire cliver est très faible car la seule manipulation de l'échantillon usiné suffit à faire cliver l'ensemble.

La preuve de principe du clivage de verre est relativement aisée pour des verres de 3 à 8 mm. À mesure que l'épaisseur à cliver augmente, la force nécessaire au clivage finit par dépasser la pression que nous pouvons appliquer manuellement : à partir de 6 mm d'épaisseur, nous utilisons notre banc de flexion à 3 points à la manière d'un mouton-pendule de Charpy [7], c'est-à-dire en flexion par choc [267].

Le positionnement de l'échantillon ne pose aucun problème pour des épaisseurs jusqu'à 8 mm : la longueur du faisceau dans le verre excède l'épaisseur. En revanche à 10 mm, la longueur des nanocanaux ne permet pas de déboucher aux deux extrémités comme le montre la figure 5.11. Pour la suite, nous plaçons le début du faisceau juste à la surface d'entrée de l'échantillon. De cette manière, nous parvenons à former un canal croisant la surface de sortie et traversant quasiment de part en part le milieu (à l'exception de la surface d'entrée). Cette configuration obtient les meilleurs résultats en terme de clivage.

La vitesse de translation joue un rôle important également. Contrairement aux applications industrielles cherchant une performance en terme de vitesse de découpe, nous nous concentrons sur l'obtention d'une bonne qualité de clivage. Au taux de répétition de 1 kHz, un clivage correct est obtenu pour des vitesses comprises entre 2 et 10 mm/s, et nous trouvons un optimum à 5 mm/s. On retrouve donc un espacement identique à celui

7. On notera que le test de Charpy mesure la *résilience* plutôt que la *ténacité* [294]. La résilience mesure la propension à absorber de l'énergie sous un choc par déformation.

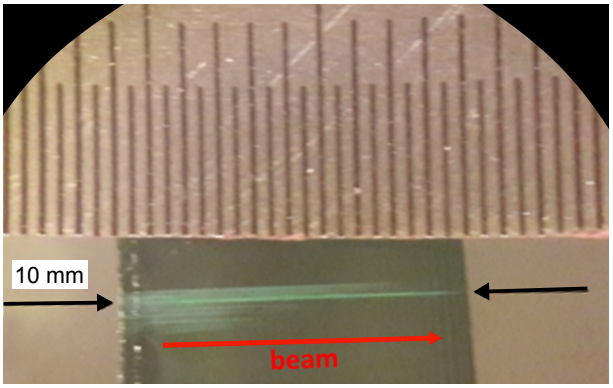

FIGURE 5.11 – Photographie de nanocanaux dans une lame de verre de 1 cm, vue par la tranche. La modification induite s'étend quasiment sur l'ensemble de l'épaisseur de l'échantillon, sans pour autant croiser la face de sortie. Dans ce cas le positionnement de l'échantillon n'est pas optimal.

de notre précédente étude (5 µm).

5.4.2/ QUALITÉ DES BORDS CLIVÉS

Comme nous avons pu le voir dans notre étude sur verre fin, on peut qualitativement étudier la qualité d'un clivage en observant les bords après séparation. L'utilisation de la macrophotograghie nous permet d'observer le bord sur une zone de 1×1 cm^2, dans laquelle les irrégularités de surface sont visibles par diffusion.

Nous compilons en figure 5.12 les photographies de bords clivés pour 5 épaisseurs de verre et 3 durées d'impulsion, permettant une comparaison directe des résultats. Un jeu de 3 échantillons sont réalisés pour chaque condition d'illumination de manière à éliminer les événements extrêmes (le processus de clivage reste, comme toute fracture, très stochastique).

Nous distinguons tout d'abord deux aspects différents de surface, pouvant apparaître simultanément sur un même échantillon (figure 5.13). L'une forme de larges zones diffusantes et planes au toucher ; l'autre possède un aspect poli et facetté, et est visible à proximité des faces d'entrée et de sortie. La première correspond à une fracture guidée et dans le plan d'usinage, synonyme d'un clivage correct. La seconde est typique d'une cassure hors plan d'usinage, et représente le comportement que l'on souhaite éviter (zones qui ne clivent pas).

Pour de faibles épaisseurs, les éclats sont marginaux et la surface clivée est très homogène sur l'ensemble du champ observé. Pour une durée d'impulsion de 2,2 ps, des éclats en face inférieure apparaissent systématiquement et sur une profondeur croissante avec l'augmentation de l'épaisseur.

L'augmentation de la durée d'impulsion permet de réduire la surface des zones présentant des éclats, qui tendent à disparaitre pour les durées d'impulsion les plus longues. Des impulsions de 6,2 ps permettent d'obtenir des bords très homogènes et pratiquement sans éclats pour des épaisseurs allant jusqu'à 8 mm. Le cas à 10 mm reste toujours sujet aux éclats, même en variant les autres paramètres d'usinage.

On peut attribuer l'apparition de ces éclats à la diminution de fluence du lobe central

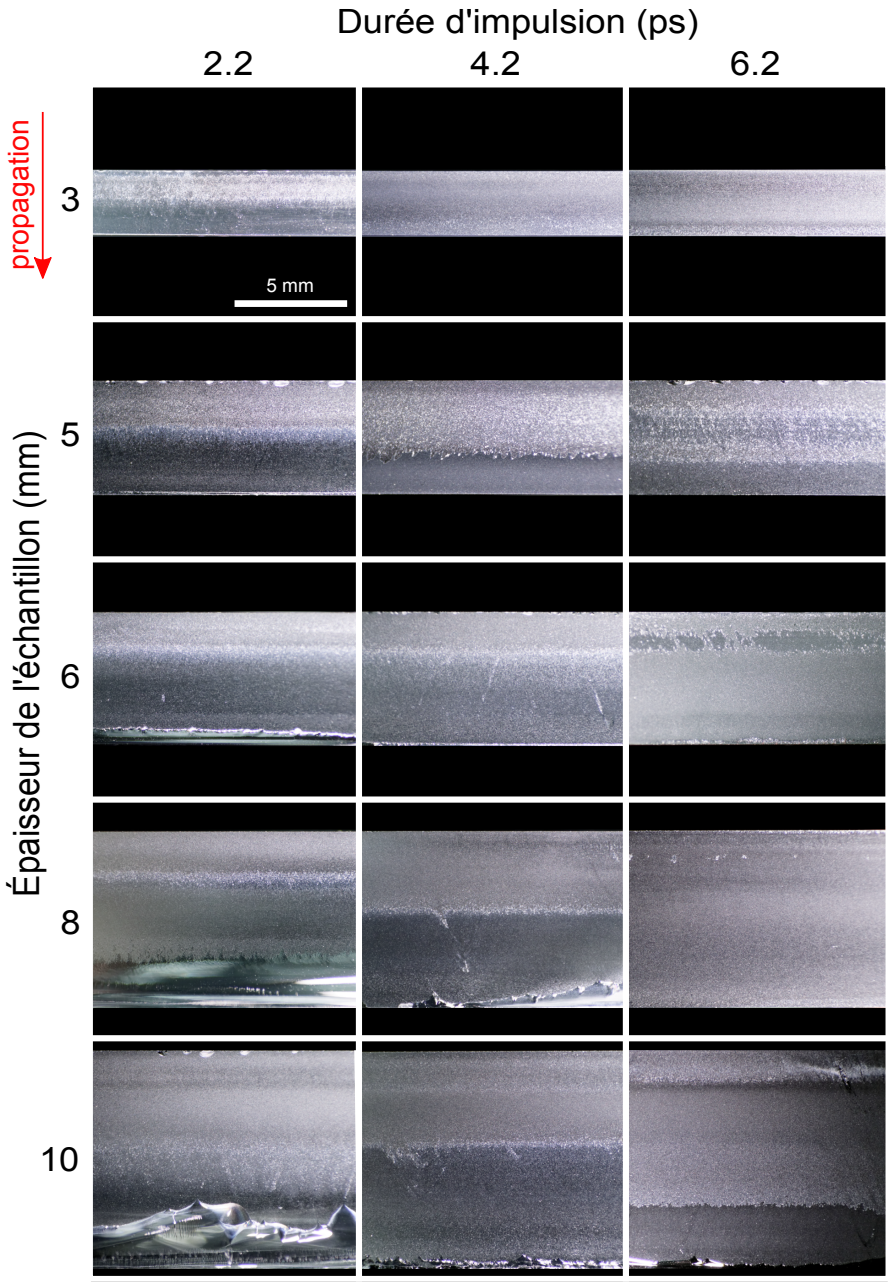

FIGURE 5.12 – Macrophotographies de bords d'échantillons clivés par faisceau de Bessel (simple passe), pour 3 durées d'impulsions en régime picoseconde et pour différentes épaisseurs de verre.

du faisceau de Bessel avec la distance de propagation (visible sur les profils d'intensité présentés en figure 5.9) : le plan fragilisé n'est pas homogène sur l'ensemble de la profondeur de l'échantillon, conduisant à une fracture à stochasticité plus élevée dans les zones peu fragilisées. L'utilisation de plus hautes énergies pourrait être une solution pour limiter l'apparition de ces éclats.

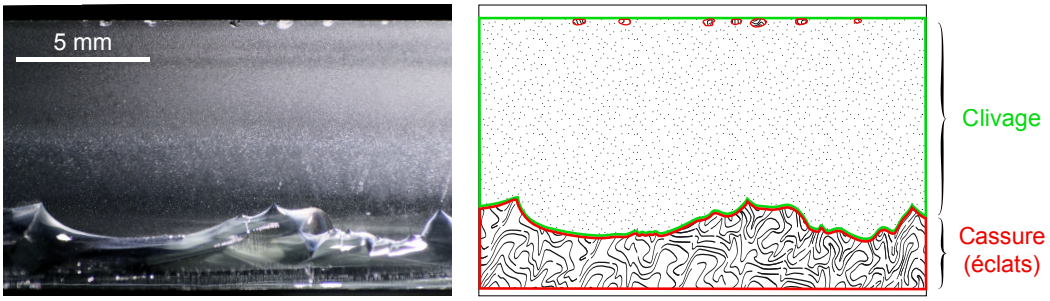

FIGURE 5.13 – Macrophotographie d'un bord d'échantillon de 10 mm clivés par faisceau de Bessel (simple passe, τ_p = 2,2 ps) et sa cartographie de fracture. On identifie deux types de fractures : un clivage sur deux tiers de sa surface (contour vert) et une cassure en plusieurs éclats (contour rouge) majoritairement vers la face inférieure de l'échantillon.

5.4.3/ RUGOSITÉ DES BORDS CLIVÉS

On s'intéresse à l'état de surface microscopique des bords clivés, afin de comparer quantitativement la qualité de clivage. Nous utilisons le même profilomètre optique que précédemment, avec un grossissement $\times$ 40 et une ouverture numérique de 0,6. La zone observée couvre une surface de 150 $\times$ 150 µm^2.

Pour donner un élément de référence à comparer avec la rugosité des bords clivés, nous mesurons tout d'abord la rugosité d'un surfacé rodée d'une optique courante (face supérieure d'un cube séparateur). Cette face dépolie est obtenue par rodage, c'est-à-dire par abrasion, lors de la finition du cube. Le rodage permet une adhérence forte en même temps qu'un toucher lisse. La moyenne quadratique (*RMS*) de la rugosité mesurée sur notre cube est de 1,1±0,2 µm.

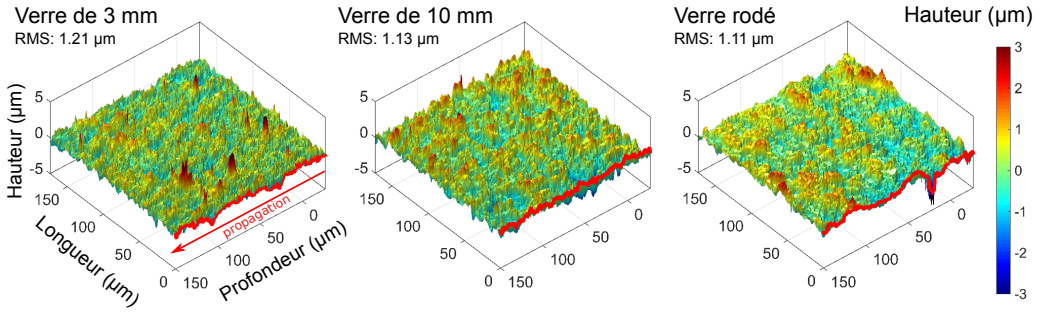

FIGURE 5.14 – Profils d'élévation pour trois surfaces de verre différentes : après clivage de lames de 3 et 10 mm (durée d'impulsion : 6,2 ps) ; après rodage industriel. La valeur RMS correspond à la rugosité quadratique moyenne sur la surface observée.

Nous mesurons le profil du bord clivé pour une durée d'impulsion de 6,2 ps, qui mène à la meilleure homogénéité de clivage. En figure 5.14, on compare les profils des bords clivés pour des verres de 3 et 10 mm (dans une zone sans éclat) avec celui d'un verre rodé. L'allure générale est sensiblement la même, bien que le cas 3 mm présente davantage d'aspérités. Pour le verre clivé, on distingue parallèlement à la direction de propagation les cannelures liées aux nanocanaux.

Épaisseur (mm)	3	5	6	8	10	Verre rodé
Rugosité RMS (µm)	1.21	1.08	1.11	1.18	1.13	1.11

TABLE 5.1 – Récapitulatif des valeurs de rugosité RMS mesurée sur les bords clivés pour des verres d'épaisseur entre 3 et 10 mm, pour une durée d'impulsion de 6,2 ps. La valeur de rugosité mesurée d'un verre rodé est donnée pour référence.

La comparaison des rugosités présentées dans la table 5.1 montre clairement que la rugosité des bords clivés (hors éclats) reste constante et très proche de la rugosité d'un verre rodé.

Dans une étude concomitante, Feuer *et al.* ont démontré la possibilité de faire cliver un verre de 8 mm d'épaisseur après illumination laser par faisceau de Bessel, pour un passage unique et des impulsions de 7,3 ps [295]. Leur article rapporte l'utilisation d'un simple axicon générant un faisceau de Bessel dont l'angle conique est égal à 10°, et d'impulsions millijoule à 1030 nm. Bien que l'article revendique le succès de clivage d'une lame de verre épaisse, le clivage obtenu reste imparfait avec une fracture peu guidée, l'apparition d'éclats (*chipping*) et une rugosité des bords clivés importante (7 µm). On peut supposer que le fort recouvrement spatial tir à tir (96% d'un tir à l'autre) peut être à l'origine de ces défauts. Le faible angle conique employé, engendrant un lobe central du faisceau de Bessel très large (6,8 µm), semble toutefois être le véritable responsable par un faible confinement de l'interaction et une plus forte sensibilité aux distorsions non-linéaires.

Notre étude montre ici un gain substantiel de qualité à travailler avec des faisceaux de Bessel à angles forts, permettant de faire cliver une lame de verre d'épaisseur identique, voire supérieure, avec une rugosité 6 fois plus faible : nous mesurons une rugosité de 1,1±0,1 µm sur l'ensemble de nos échantillons.

En comparant ces deux études il est intéressant de noter la corrélation presque directe entre le diamètre du lobe central du faisceau de Bessel et la rugosité obtenue : pour un diamètre de 6,8 µm, Feuer *et al.* obtiennent une rugosité de surface proche de 7 µm tandis que dans notre étude un diamètre du lobe central de 0,74 µm conduit à une rugosité à 1,1 µm. L'utilisation d'angles forts semble être ici un facteur majeur pour réduire la rugosité des bords clivés.

5.4.4/ DÉMONSTRATION DE PRINCIPE : DÉCOUPE DE CARRÉS

Pour confronter notre méthode de découpe à une application réelle, nous démontrons ici la possibilité d'usiner des carrés de 30×30 mm^2 pour des épaisseurs de verre jusqu'à 10 mm, par une seule passe laser par côté. Afin de conserver un espacement constant entre deux tirs, la vitesse de déplacement relative de l'échantillon doit être homogène sur les sections servant au clivage. Le laser ne possède pas de système de blocage du faisceau et tire en continu : nous paramétrons alors le parcours relatif du laser sur l'échantillon de manière à laisser une distance d'accélération et de décélération à chaque changement de trajectoire, tout en ne réalisant qu'une passe unique pour chaque bord du carré (figure 5.15.a).

Chaque côté du carré est clivé successivement, pour isoler au final le carré. La séparation de carrés de 3 mm d'épaisseur s'effectue aisément et sans éclat : comme on peut le voir

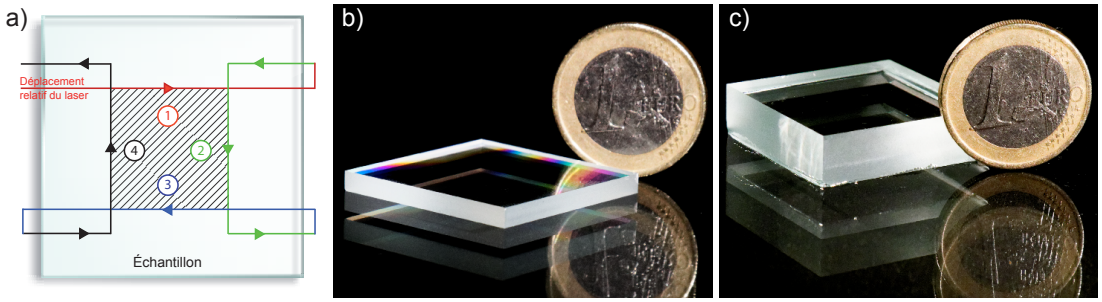

FIGURE 5.15 – Découpes de carrés par clivage : a) Schéma du parcours relatif du laser sur l'échantillon. b) et c) Carrés clivés dans des échantillons de respectivement 3 mm et 10 mm, comparés à la taille d'une pièce de 1 euro. Le carré de 3 mm d'épaisseur ne présente aucune imperfection, tandis que le carré de 10 mm possède quelques éclats.

en figure 5.15.b, le carré formé ne possède pas de défauts de fracture visibles, et chaque surface clivée a un état de surface semblable à celui mesuré dans la section précédente. En revanche le nombre de défauts augmente avec l'épaisseur du matériau : à 5, 6 et 8 mm quelques éclats apparaissent dans les coins. À 10 mm de longues portions de bords éclatent à proximités des surfaces inférieures et supérieures, et sont par exemple visibles en figure 5.15.c sur les deux bords présentés, en bas.

5.5/ CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Ce chapitre montre la possibilité d'étendre à des épaisseurs centimétriques les capacités d'usinage par faisceau de Bessel en vue d'applications de découpe haute-vitesse du verre. En changeant le type de montage optique utilisé, nous générons un faisceau de Bessel robuste aux effets non-linéaires et dont l'énergie peut dépasser aisément le millijoule sans risquer un endommagement des optiques.

Le système à 3 axicons pouvant en théorie supporter des énergies de l'ordre du joule, son utilisation avec une chaine laser de haute énergie permettrait la génération de faisceaux de Bessel dans lesquels l'intensité atteindrait un régime relativiste ($I > 10^{18} W/cm^2$). Ceci ouvre alors des possibilités en terme d'accélération de particules [56–58, 296] et pour la génération de rayonnements de plus haute énergie par faisceaux de Bessel tels que des UVs [297] et UVs lointains [298].

En ce qui concerne les applications du dispositif à 3 axicons pour la découpe du verre, nous réalisons ici une preuve de principe du clivage par simple passe laser de verre dont l'épaisseur peut atteindre le centimètre. Bien que l'apparition d'éclats subsiste localement, l'état de surface après clivage est comparable avec celui atteint pour les verres fins et est identique à celui d'un verre rodé. Cet ensemble constitue dans le monde du verre épais une première qui, bien que le procédé n'ait pas été optimisé, se place directement au niveau des qualités de découpe industrielles courantes pour les verres minces (incluant l'étape de rodage). Il est probable qu'en explorant une plage plus étendue de paramètres, la qualité de clivage puisse être encore augmentée.

Dans notre étude l'amplificateur utilisé n'est pas dédié à l'usinage laser picoseconde

et limite à la fois l'énergie et la durée d'impulsion accessible. De même, la vitesse de déplacement de l'échantillon est limitée par le taux de répétition de l'amplificateur et cette vitesse de 5 mm/s n'est évidemment pas adaptée pour un dispositif de découpe industrielle. Une plus ample exploration sera nécessaire à l'avenir, en utilisant des sources adaptées : on pourra imaginer aisément l'installation du système à 3 axicons sur un laser dont les impulsions millijoule ont des durées d'impulsion comprises entre 5 et 50 ps et dont le taux de répétition atteint 100 kHz. Dans le cas à 100 kHz, nous pourrons mettre en perspective nos résultats avec des applications industrielles réelles puisque d'un espacement de 5 µm entre tirs correspond alors à une vitesse d'écriture de 0,5 m/s, devenue une vitesse standard dans la plupart des systèmes de découpe laser en série.

En remplaçant chaque tir laser unique par une série d'impulsions à haute cadence (typiquement 100 MHz en commercial, GHz en prototypes) sous la forme d'un *burst* d'impulsions, on peut augmenter l'efficacité du dépôt d'énergie [154, 299–301] et ainsi améliorer les capacités de clivage [286]. La combinaison d'un laser picoseconde délivrant des bursts de moins de 10 impulsions avec les techniques de mise en forme spatiale ouvre de nouvelles perspectives en terme d'usinage laser, en ayant démontré une grande efficacité pour l'écriture de nanocanaux à très haut facteur de forme dans le verre [157] et pour le clivage simple passe du verre de 3 mm par exemple (Amplitude Systèmes). Bien que l'engouement pour les trains d'impulsions grandisse fortement ces dernières années, notre système autorise des performances pour l'instant supérieures à celles offertes par l'utilisation des bursts combinées aux techniques usuelles : les sources femtoseconde et picoseconde conventionnelles ont encore à l'avenir du potentiel à défendre dans la course à la découpe de haute de vitesse du verre.

Enfin, puisque nous avons montré une forte amélioration des propriétés de clivage du verre en modifiant la géométrie des faisceaux de Bessel (chapitre 4), nous pourrons nous pencher vers une seconde version du montage à 3 axicons, combinant les deux méthodes d'usinage développées au cours de cette thèse. La solution pourrait alors utiliser un astigmatisme contrôlé [265, 289], le filtrage spatial [278, 287, 302] ou encore les faisceaux de Mathieu [281–283] afin de générer des nanocanaux elliptiques ayant des rapports d'aspects supérieurs à (10 000:1) en vue de pousser encore davantage les performances du clivage du verre de grande épaisseur.

III

CONCLUSION

6

CONCLUSION GÉNÉRALE

6.1/ BILAN

Ce travail de thèse a porté sur l'étude de l'interaction laser-matière en régime femtoseconde dans les diélectriques, et plus particulièrement pour des impulsions spatialement mises en forme de faisceaux de Bessel. Nous nous sommes concentrés sur le contrôle du dépôt d'énergie dans le milieu par couplage de l'impulsion avec le plasma généré, qui constitue le seul degré de liberté en notre possession sur l'ablation laser pour un milieu d'interaction donné.

La première partie de ce travail a concerné la conception, la réalisation et l'exploitation d'une expérience pompe-sonde interférométrique dont l'objectif final est la mesure de la densité du plasma, résolue en temps et en espace. Du fait des hautes résolutions nécessaires à la fois temporellement et spatialement, nous avons fait le choix de travailler à hautes ouvertures numériques et avec des impulsions sondes les plus courtes possible. Nous avons dû développer une méthode de synchronisation des impulsions au sein même de l'échantillon, permettant une caractérisation spatio-temporelle de l'impulsion sonde *in situ* et son optimisation. Notre choix s'est porté sur la mise en forme de l'impulsion pompe en un réseau d'intensité, induisant dans le milieu un réseau d'indice transitoire, sur lequel l'impulsion sonde diffracte lorsque le délai pompe-sonde est proche de zéro. Nous avons pu mettre en évidence la possibilité d'optimiser la pré-compensation de dispersion sur l'impulsion sonde, ainsi que de corriger les défauts spatio-temporels provenant du compresseur à prismes utilisé pour ce faire.

Nous avons ensuite développé une expérience pompe-sonde d'imagerie axiale, afin d'imager la dynamique transverse des impulsions de Bessel. Une technique interférométrique, basée sur un bras de référence compensé en dispersion permet de retrouver le profil de phase et d'amplitude en sortie d'échantillon. En utilisant une approximation de l'équation de propagation de Helmholtz, nous avons montré qu'il est possible de reconstruire l'indice de réfraction complexe local dans un plan, à partir de la connaissance de l'amplitude complexe de l'onde sonde dans ce plan et deux de ses plans voisins. L'indice de réfraction complexe est alors mesuré pour différents délais dans trois matériaux (silice fondue, borosilicate et saphir), et nous a permis d'observer la dynamique d'ablation avec des résolutions temporelles d'environ 100 fs et spatiale de 200 nm, sur des durées entre pompe et sonde allant jusqu'à 6 ns.

Nous avons pu établir une première preuve de principe du fonctionnement de notre

expérience et de notre méthode. La dynamique sub-picoseconde a montré d'importantes modifications de l'indice de réfraction transitoire, et un confinement de l'interaction sur un rayon inférieur à 1 µm, pour un faisceau de Bessel d'angle 26° (dans l'air) dont l'énergie est proche du seuil d'ablation. La dynamique nanoseconde a mis en évidence la propagation dans le milieu d'ondes de choc cylindriques dont la célérité a pu être mesurée. Nous avons également pu discuter de la compatibilité de nos résultats avec les modèles de formation des nanocanaux, à savoir micro-explosions "lente" [120] ou "rapide" [115].

Deux expériences complémentaires ont été réalisées. La première a permis de mesurer le spectre en champ lointain d'auto-réflexion de l'impulsion pompe sur le plasma. Par une comparaison avec un modèle numérique, et en injectant les diamètres du plasma mesurés grâce à l'expérience pompe-sonde, nous montrons que le plasma généré atteint vraisemblablement la densité critique. La seconde expérience concerne également une mesure en champ lointain et s'intéresse au signal d'émission lors de l'interaction laser-matière. Nous montrons pour la première fois la génération d'un signal de seconde harmonique par couplage laser-plasma dans le volume d'un milieu transparent, grâce au plasma formé. Ce signal est émis sous la forme d'un cône, dont l'angle est similaire à celui du faisceau de Bessel d'excitation. L'utilisation d'une seconde impulsion pompe espacée dans le temps de quelques centaines de femtosecondes nous a permis de voir que cette génération de seconde harmonique échappe pour le moment aux modèles conventionnels.

Une seconde importante partie de ce travail a concerné l'utilisation des faisceaux de Bessel pour des applications à la découpe du verre à haute vitesse. Par l'induction d'une ligne de nanocanaux, nous pouvons faire cliver le verre grâce à la fragilisation d'un plan sur l'ensemble de son épaisseur. Nous avons présenté les enjeux principaux liés à cette technique et deux limites qui lui étaient associées.

La première limite concernait l'obtention d'une direction de fracture privilégiée alors que nous travaillons dans un milieu isotrope et jusqu'ici avec des faisceaux à géométrie de révolution. En utilisant les propriétés de l'optique de Fourier nous avons réalisé une opération de filtrage spatial, pour obtenir des quasi-faisceaux de Bessel, dont le lobe central possède une section elliptique. Ces faisceaux sont en mesure de former des nanocanaux à l'instar de leurs homologues d'origine, à la différence près que leur section transverse est elle-même elliptique. Nous avons montré que l'utilisation des faisceaux de Bessel elliptiques présente pour le clivage du verre un avantage significatif par rapport aux faisceaux de Bessel conventionnels, aussi bien en terme de qualité de clivage que de facilité de fracture.

La seconde limite était liée aux dispositifs optiques de mise en forme spatiale : les hautes énergies nécessaires à la découpe de verre épais (plusieurs millimètres) par faisceaux de Bessel à hauts angles ne pouvaient pas être supportées sans risque d'endommagement des optiques ou risque de distordre le faisceau par effets non-linéaires. Nous avons proposé ici un nouveau type de montage optique, capable de supporter des énergies de l'ordre du joule. Ce système permet une mise en forme spatiale à haut angle conique sur plusieurs millimètres de long. Nous sommes parvenus à la preuve de principe du clivage de verre épais (entre 3 et 10 mm) en un seul passage sous le laser, tout en garantissant une excellente qualité de découpe.

Notre travail a permis de montrer que la formation des nanocanaux par faisceaux de Bessel est un processus impliquant un plasma confiné et atteignant très probablement

la densité critique en son centre. Nous avons pu montrer que l'expérience d'imagerie dont nous disposons possède un fort potentiel quant à la mesure de la distribution de densité du plasma à 3+1 dimensions. Ce plasma est le siège d'interactions non-linéaires complexes, et l'étude des rayonnements transmis/réfléchis/émis constitue un outil vers une compréhension ces interactions. Nous sommes parvenus à établir une estimation de la densité plasma qui rentre en accord avec les valeurs retournées par les mesures d'indice de réfraction. Toutefois la route vers la modélisation complète du dépôt d'énergie par faisceaux de Bessel s'avère encore longue.

Malgré les déficiences des modèles d'interactions actuels, nous avons pu mettre à profit cette physique complexe pour l'amélioration de procédés industriels, en réalisant notamment une première mondiale quant à l'épaisseur du verre découpé par un seul passage sous le laser. L'approche phénoménologique reste dans le domaine applicatif une solution viable pour le développement par incréments de nouvelles techniques d'usinage laser. Cependant la compréhension de la physique de l'interaction laser-matière demeure à mon humble avis la seule voie vers des progrès majeurs.

6.2/ PERSPECTIVES

Au terme de cette thèse, plusieurs axes de travail s'ouvrent à nous. Notre expérience pompe-sonde et notre méthode d'extraction de l'indice ayant montré des premiers résultats encourageants, nous pouvons à présent commencer à explorer l'espace des paramètres au delà d'une seule énergie, d'une seule polarisation et d'une seule mise en forme spatiale du faisceau. De même, nous prévoyons de quitter l'observation dans un simple plan pour nous porter sur une mesure à 3+1 dimensions, permettant de reconstituer la distribution d'indice dans l'espace et résolue en temps.

Une grande attention sera apportée à la réduction du bruit sur l'indice reconstruit et sur le découplage de ses contributions réelles et imaginaires. De cette manière les mesures sur l'indice de réfraction pourront être traduites en terme de densité du plasma et ainsi ramenée directement à la physique d'interaction laser-matière. D'autres axes expérimentaux sont envisagés, particulièrement en mettant en forme spatialement l'impulsion sonde ou encore en réalisant des mesures spectrales à l'aide d'une sonde accordable en longueur d'onde.

Nous songeons également à exploiter la présence d'un second SLM (évoqué dans le chapitre 3, partie 3.2.2.3) pour observer la dynamique d'ablation par double impulsion. L'interaction de la seconde impulsion avec le plasma formé par la première impulsion sera d'un fort intérêt, permettant de comparer directement les simulations réalisées dans notre équipe par Kazem Ardaneh et Benoit Morel avec les résultats expérimentaux dans des conditions similaires.

Concernant les applications à la découpe du verre, les preuves de principe ont été démontrées et la poursuite des travaux relève davantage du développement technologique que de la recherche. Pour nos deux solutions proposées, un processus d'optimisation sera nécessaire en vue d'une application à des systèmes industriels réels : le clivage réalisé par nos soins ne satisfait pas à ce stade les besoins à un niveau de production de masse. Néanmoins des travaux concomitants montrent un réel engouement quant à la conception de nouvelles solutions de découpe du verre par mise en forme spatiale avancée du faisceau, et nous invitent à poursuivre l'exploration.

A

MÉTHODE D'OBSERVATION DES NANOCANAUX PAR LA TRANCHE

La mesure des dimensions des nanocanaux induits par des impulsions laser femtoseconde requiert une haute résolution spatiale et l'emploi de la microscopie électronique à balayage (MEB). Cette technique travaille par diffusion des électrons en surface du milieu et nécessite la métallisation de l'objet à observer afin d'éviter les effets d'accumulation de charges. Une solution pour accéder au nanocanal consiste à faire cliver l'échantillon en passant précisément par le plan médian du canal, mais cette solution est statistiquement peu fiable et particulièrement inadaptée lorsque le clivage de l'échantillon est impossible (voir chapitre 4).

Accéder aux dimensions du nanocanal dans la profondeur nécessite alors de creuser dans l'échantillon et d'ouvrir par la tranche le canal. Nous utilisons la combinaison de double faisceau disponible sur le microscope électronique à notre disposition (Dual Beam FEI^{TM} Helios Nanolab 600i), permettant grâce au faisceau d'ions focalisé (FIB) de venir creuser le milieu par bombardement d'ions. Le courant du faisceau d'ions permet de contrôler la vitesse ainsi que la finesse de creusement : un courant important permet un enlèvement de matière rapide mais peu précis, et à l'inverse un faible courant permettra un contrôle fin de l'ablation mais sera plus coûteux en temps. En procédant par étapes et en diminuant le courant par paliers, nous pouvons réaliser une approche fine pour l'ouverture d'un canal par la tranche.

L'ensemble du processus d'imagerie des canaux par la tranche est présenté en figure A.1 et comporte 6 étapes, partant d'un échantillon tel qu'ablaté par le laser jusqu'à l'observation d'un nanocanal ouvert par son milieu sur une partie de sa hauteur :

1. L'échantillon est inséré dans la chambre du microscope et est orienté perpendiculairement au faisceau d'ions. Le nanocanal à ouvrir par la tranche est présenté en rouge sur la figure A.1.
2. Nous réalisons un dépôt de platine local, permettant de protéger le nanocanal d'éventuelles projections de matière ablatée ou de bavures du faisceau d'ions lorsque le courant est fort. L'épaisseur du dépôt est de 1 µm environ.
3. Nous creusons à fort courant (65 nA) une tranchée en paliers, afin de dégager grossièrement la vue par le côté du canal. Nous restons à bonne distance (plusieurs microns) du nanocanal pour éviter tout endommagement par le faisceau assez large. Typiquement pour une profondeur de 30 µm, les paliers couvrent une distance de 100 µm et la largeur de la tranchée est de 20 µm pour dégager claire-

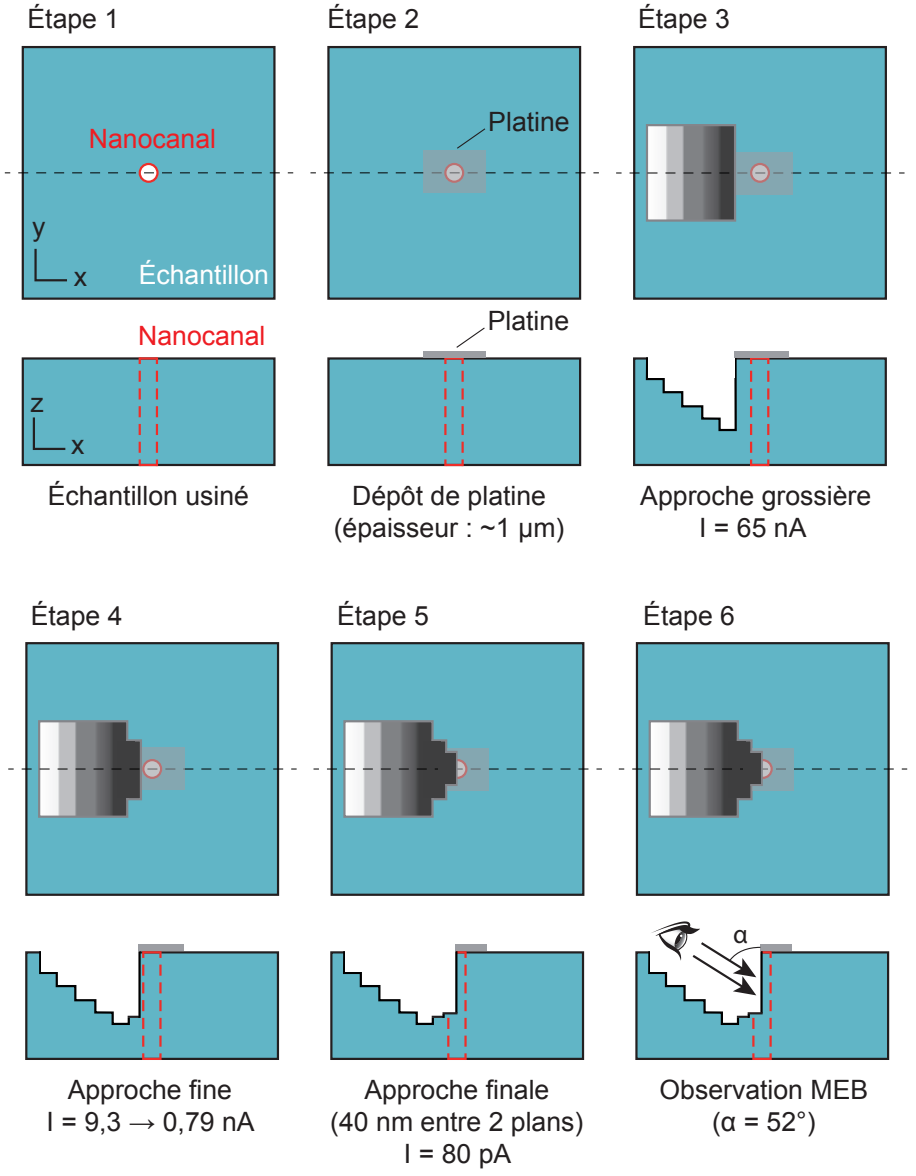

FIGURE A.1 – Étapes de la méthode d'observation des nanocanaux par la tranche, à l'aide d'une combinaison FIB/MEB.

ment le canal *a posteriori*.

4. Pour approcher davantage le nanocanal, nous diminuons graduellement le courant à 9,3 nA à 0,79 nA et creusons jusqu'à nous trouver à 1 ou 2 µm du canal.
5. L'étape 5 est la plus longue du processus du fait du courant très faible employé (80 pA) et par conséquent du faible taux d'enlèvement de matière. Nous approchons par le côté et couche par couche du nanocanal, avec un pas de 40 nm entre deux passages du faisceau d'ions. Le canal ayant un diamètre de l'ordre de 200-600 nm, son ouverture en deux par le milieu se joue à un balayage près.
6. Nous réalisons une image au MEB haute résolution par le côté de la dernière couche creusée au FIB. Nous itérons un enchainement étape 5 et 6 pour chaque couche, jusqu'à atteindre celle coïncidant avec le milieu du canal. La colonne du faisceau d'ions et celle du faisceau d'électron sont séparées de 52° : l'observation

par la tranche se fait en réalité avec le même angle, et la focalisation du faisceau d'électron est automatiquement adaptée pour rester net sur l'ensemble de la hauteur visible.

Pour des raisons de temps, nous n'observons les nanocanaux que sur quelques dizaines de microns de profondeur : le temps de creusement de la tranchée d'approche prend déjà plus d'une heure pour une profondeur de 20 à 30 µm. L'observation se faisant avec un angle de 52°, il est nécessaire de creuser assez loin (paliers de l'étape 3) du nanocanal afin de dégager le champ d'observation vertical sur toute la hauteur du nanocanal : à courants constants, le coût temporel croit donc avec le carré de la profondeur que l'on souhaite creuser. Envisager l'ouverture complète d'un nanocanal de 150 µm sur toute sa hauteur prendrait typiquement une journée.

B

DÉTAILS DE CALCUL : SYSTÈME À 3 AXICONS

Dans cette seconde annexe, nous détaillons les calculs présentés dans le chapitre 5 concernant les propriétés du faisceau de Bessel généré par notre système à 3 axicons. Une succession de calculs de réfraction au niveau des différents dioptres du système nous permet de retrouver les grandeurs géométriques principales du faisceau : son angle θ_f, sa distance de formation à la dernière optique d_w (distance de travail) et la longueur du faisceau L_B.

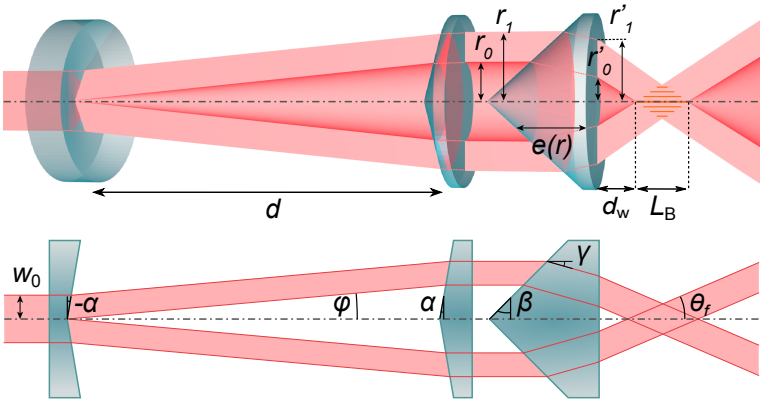

FIGURE B.1 – Schéma de principe du montage à 3 axicons. Les deux premiers axicons possèdent un angle $\pm\alpha$ et le troisième un angle β. Le faisceau de Bessel de longueur L_B se forme après une distance d_w et possède un angle θ_f.

Nous introduisons par rapport au schéma présenté dans le chapitre 5 des notations intermédiaires, de manière à alléger les calculs par la suite.

- L'angle de divergence du faisceau après le premier axicon sera noté φ.
- L'anneau collimaté après le second axicon possède des rayons intérieur r_0 et extérieur r_1.
- De même, l'anneau qui intercepte la face de sortie du dernier axicon possède des rayons intérieur r'_0 et extérieur r'_1.
- Enfin nous nommons $e(r)$ le profil d'épaisseur du dernier axicon en fonction de la position radiale r.

B.1/ ANGLE DU FAISCEAU DE BESSEL DANS L'AIR : θ_f

L'angle θ_f est seulement lié à l'angle conique β et l'indice de réfraction n_{ax} du dernier axicon. Comme la pointe de celui-ci est tournée vers la source, il faut tenir compte de deux réfractions successives, sur chacun des dioptres. On se place dans le référentiel du 1^{er} dioptre de l'axicon (face conique), et on nomme γ l'angle par rapport à l'axe optique des rayons réfractés dans l'axicon :

$$\begin{aligned} \sin\beta &= n_{ax}\sin(\beta-\gamma) \\ \gamma &= \beta - \arcsin\left(\frac{\sin\beta}{n_{ax}}\right) \end{aligned} \tag{B.1}$$

On peut alors déduire l'angle de focalisation final θ_f en fonction des propriété de l'axicon en injectant γ dans la loi de Snell-Descartes prise à la second face (plane) de l'axicon :

$$n_{ax}\sin\gamma = \sin\theta_f$$

$$\begin{aligned} \theta_f &= \arcsin(n_{ax}\sin\gamma) \\ &= \arcsin\left(n_{ax}\sin\left(\beta - \arcsin\left(\frac{\sin\beta}{n_{ax}}\right)\right)\right) \end{aligned} \tag{B.2}$$

Compte tenu des constantes du système (β = 45°, n_{ax} = 1,45), nous obtenons les valeurs numériques suivantes :

- γ = 15,8°
- θ_f (n=1) = 23,3 ° (dans l'air)
- θ_f (n=1,5) = 15,3 ° (dans le verre)

B.2/ DISTANCE DE TRAVAIL : d_w

La variation de la distance d permet d'ajuster continument la position du début de focalisation du faisceau de Bessel. De par les angles et les dimensions des différents composants constituant le système, il existe un domaine de définition limité pour d, et on nomme ses bornes d_{min} et d_{max}. La première provient de la condition pour laquelle la distance de travail est positive, la seconde est liée au diamètre effectif des axicons utilisés.

Calcul de d_{max} : Le faisceau incident n'est pas dévié par le premier dioptre (incidence nulle). On se place au niveau du second dioptre du premier axicon, où le loi de Snell-Descartes nous donne :

$$n_{ax}\sin\alpha = \sin(\varphi+\alpha),$$

$$\varphi = \alpha - \arcsin(n_{ax}\sin\alpha).$$

L'angle α étant faible (10°) on peut raisonnablement linéariser le problème [10] :

$$\varphi \approx \alpha(n_{ax}-1).$$

Ce qui nous donne une divergence de 4,6° des rayons par rapport à l'axe optique après le premier axicon. Les deux axicons sont séparés de la distance d et le second axicon possède un angle complémentaire au premier. On peut alors estimer le rayon intérieur r_0 de l'anneau formé après le deuxième axicon par :

$$r_0(d) = d \tan\varphi,$$

$$r_0(d) \approx d\alpha(n_{ax} - 1). \tag{B.3}$$

Toujours dans notre hypothèse linéaire (approximation aux faibles angles), le rayon extérieur r_1 est lié uniquement à r_0 et au diamètre $\text{Ø} = 2w_0$ du faisceau incident au système (7,5 mm sur l'expérience) :

$$r_1(d) = r_0(d) + w_0. \tag{B.4}$$

On prendra garde à ce que r_1 reste inférieur au rayon effectif r_{eff} du second axicon afin de ne pas couper partiellement le faisceau. Cette limite impose un d_{max} au système, tel que $2r_1(d_{max}) = 2r_{eff}$ = 22,9 mm (du fait des bagues de maintient des optiques dans les montures) :

$$d_{max} = \frac{r_{eff} - w_0}{\alpha(n_{ax} - 1)}. \tag{B.5}$$

La distance d est donc majorée dans notre système à d_{max} = 98 mm.

Calcul de d_{min} : On définit d_w comme la distance algébrique entre la face de sortie du dernier axicon et le plan dans lequel le faisceau de Bessel commence à se former. Il est très important de remarquer que pour des faibles valeurs de d, on peut créer une situation de focalisation interne ($d_w < 0$) dans laquelle on risque fortement d'endommager l'axicon lui-même.

La condition $d_w > 0$ doit être à tout prix respectée, sous peine d'engendrer une destruction de ce dernier. En d'autres termes le rayon r_0 d'entrée de l'anneau collimaté entre le premier et deuxième axicon doit être suffisamment grand pour générer le faisceau de Bessel hors de l'axicon, ce qui implique à d de prendre une valeur minimale d_{min}.

La condition à laquelle $d_w > 0$ peut également s'exprimer par $r'_0 > 0$. En établissant les relations $r_0 = f(\alpha, d)$ et $r'_0 = g(\beta, r_0)$, nous déterminons la position d_{min} garantissant une focalisation externe.

Pour établir le lien entre r_0 et r'_0, il faut tenir compte de l'épaisseur $e(r)$ traversée par chaque portion de faisceau dans le dernier axicon. Celle-ci varie linéairement avec r, la coordonnée radiale par rapport à l'axe optique (cas cylindrique) :

$$e(r) = e_{ax} - r \tan\beta,$$

où e_{ax} représente l'épaisseur totale de l'axicon (de la pointe à la face de sortie). D'après les plans constructeur, e_{ax}= 17,8 mm sur notre axicon.

On exprime r'_0 en fonction de $e(r)$ et r_0 :

$$\begin{aligned} r'_0 &= r_0 - e(r_0)\tan\gamma \\ &= d\alpha(n_{ax} - 1) - (e_{ax} - d\alpha(n_{ax} - 1)\tan\beta)\tan\gamma. \end{aligned}$$

Par extension on remonte à l'expression de d_w :

$$\begin{aligned} d_w &= \frac{r'_0}{\tan\theta_f} \\ &= \frac{d\alpha(n_{ax}-1)\,(1+\tan\beta\tan\gamma) - e_{ax}\tan\gamma}{\tan\theta_f} \end{aligned} \tag{B.6}$$

On remarque que la dépendance de la distance de travail d_w avec la distance d'ajustement d est linéaire, ce qui peut aisément se comprendre puisque l'ensemble des surfaces mises en jeu possède un profil radial linéaire.

Nous nous plaçons au cas limite où $d_w = 0$, qui définit la valeur de d_{min} :

$$d_{min} = \frac{e_{ax}\tan\gamma}{\alpha(n_{ax}-1)\,(1+\tan\beta\tan\gamma)} \tag{B.7}$$

Pour les angles proposés dans ce chapitre, ceci conduit à une distance minimale pour d sous peine de former le faisceau de Bessel dans le dernier axicon. Cette distance minimale est alors $d_{min} = 5$ cm.

B.3/ LONGUEUR DU FAISCEAU DE BESSEL : L_B

La longueur du faisceau de Bessel L_B dépend pour sa part de l'angle β et de l'épaisseur de l'anneau en sortie du dernier axicon :

$$L_B = \frac{r'_1 - r'_0}{\tan\theta_f} \tag{B.8}$$

À l'entrée du dernier axicon, on a un anneau d'épaisseur $r_1 - r_0 \approx w_0$ du fait des faibles angles de deux premier axicons. Établissons les liens entre les rayons de l'anneau avant et après l'axicon :

$$\begin{cases} r'_0 &= r_0 - e(r_0)\tan\gamma, \\ r'_1 &= r_1 - e(r_1)\tan\gamma. \end{cases}$$

On déduit alors l'épaisseur de l'anneau en sortie de l'axicon : $r'_1 - r'_0 = w'_0$

$$\begin{aligned} w'_0 &= r_1 - e(r_1)\tan\gamma - r_0 + e(r_0)\tan\gamma, \\ &= r_1 - r_0 + (e(r_0) - e(r_1))\tan\gamma. \end{aligned}$$

Remplaçons $e(r)$ par sa valeur explicite dépendant des constantes du dernier axicon $e(r) = e_{ax} - r\tan\beta$:

$$\begin{aligned} w'_0 &= w_0 + (\cancel{e_{ax}} - r_{in}\tan\beta - \cancel{e_{ax}} + r_{out}\tan\beta)\tan\gamma, \\ &= w_0(1+\tan\beta\tan\gamma). \end{aligned} \tag{B.9}$$

On obtient alors l'expression littérale de L_B :

$$L_B = \frac{w_0(1+\tan\beta\tan\gamma)}{\tan\theta_f}. \tag{B.10}$$

Pour $d = 9{,}8$ cm et $2w_0 = 7{,}5$ mm, on obtient $L_B = 11{,}2$ mm.

C

ARTICLES PUBLIÉS PENDANT LA THÈSE.

Cette troisième annexe présente une compilation des travaux publiés dans des journaux à comité de lecture pour les 3 premiers cas et dans la presse spécialisée pour le dernier.

À l'heure où ces lignes sont écrites, deux articles se rapportant respectivement aux résultats présentés dans les chapitres 2 et 3 sont en cours de préparation. Dans le cas de ce dernier, des nouvelles expériences sont encore nécessaires pour explorer davantage l'espace des paramètres.

C.1/ NANOCANAUX ELLIPTIQUES À HAUT FACTEUR DE FORME.

Letter Vol. 42, No. 21 / November 1 2017 / Optics Letters 4307

Optics Letters

Single-shot ultrafast laser processing of high-aspect-ratio nanochannels using elliptical Bessel beams

R. Meyer, M. Jacquot, R. Giust, J. Safioui, L. Rapp, L. Furfaro, P.-A. Lacourt, J. M. Dudley, and F. Courvoisier*

FEMTO-ST, Université de Bourgogne-Franche-Comté UMR-6174, 25030 Besancon, France
**Corresponding author: francois.courvoisier@femto-st.fr*

Received 1 August 2017; revised 9 September 2017; accepted 9 September 2017; posted 26 September 2017 (Doc. ID 303659); published 18 October 2017

Ultrafast lasers have revolutionized material processing, opening a wealth of new applications in many areas of science. A recent technology that allows the cleaving of transparent materials via non-ablative processes is based on focusing and translating a high-intensity laser beam within a material to induce a well-defined internal stress plane. This then enables material separation without debris generation. Here, we use a non-diffracting beam engineered to have a transverse elliptical spatial profile to generate high-aspect-ratio elliptical channels in glass of a dimension 350 nm × 710 nm and subsequent cleaved surface uniformity at the sub-micron level. © 2017 Optical Society of America

OCIS codes: (320.0320) Ultrafast optics; (320.5390) Picosecond phenomena; (160.2750) Glass and other amorphous materials.

https://doi.org/10.1364/OL.42.004307

The high peak power of ultrafast laser pulses has revolutionized material processing, opening a wealth of new applications in microelectronics and for the development of technologies such as touch-screens and solar panels [1]. However, these mass markets for fabrication require material processing at high resolution and high speed, mechanical dicing, or conventional laser ablation only poorly address this need. For example, mechanical techniques such as diamond saw dicing, water-jet dicing or the scribe-and-cleave technique are slow and lead to excessive material waste, while conventional laser ablation generates deleterious surface debris [2]. In this context, a new processing technology of transparent materials known as stealth machining is currently showing great promise because, rather than using ultrashort pulses for direct material ablation, infrared pulses are used to create an internal damage plane allowing cleaving without debris generation [3]. In previous works, the damage plane was generated through laser-induced defects of ∼5–10 μm that induce internal cracks whose orientation could be controlled with elliptical beam shaping [4,5].

To increase the surface quality beyond the micron scale, stealth nanomachining has also recently been demonstrated using a series of aligned nanochannels processed by ultrafast lasers. However, while the promise of stealth nanomachining has been demonstrated using extended plasma filaments with symmetric transverse profiles [6–9], the cleaved surfaces did not precisely follow the linear array of machined channels, resulting in unwanted damage on both sides of the separated surfaces. In this Letter, we solve this problem and report a new approach to stealth nanomachining using a novel class of "non-diffracting," or propagation-invariant, beams that are engineered to have a transverse elliptical spatial profile. We show that the nonlinear filamentation of these beams generates high-aspect-ratio nanochannels in glass with an elliptical cross section, and this nanoscale ellipticity leads to well-defined stress planes which facilitate material separation and yields cleaved surfaces with record sub-micron uniformity.

The physics of ultrafast laser material processing is based on the fact that the high peak power and picosecond or femtosecond duration of an incident pulse results in strongly localized energy deposition at a confined site within a transparent material [1]. This energy deposition can be sufficiently high to induce a strong internal stress field [10] and associated internal fissures and voids [6,11–14]. A specific regime of energy deposition occurs when the pulse propagation is highly nonlinear and generates spatial filaments that generate a longitudinally extended region of damage within the depth of the transparent dielectric. The principle of stealth nanomachining is to combine the generation of such extended damage regions with high-speed scanning to induce a weakened plane within the material. When followed by the application of a weak applied mechanical stress, the material cleaves naturally along this plane resulting in material separation without material loss or deleterious debris [3,5,7–9], in contrast with a conventional ablative process.

Although nonlinear filamentation can occur with any focused ultrashort pulse, such spontaneous filamentation is highly sensitive to variation of input conditions [15]. As a result, machined structures arising from spontaneous filamentation are difficult to predict [16]. In this context, however, the use of non-diffracting Bessel beams presents significant advantages. Such Bessel beams are formed by the cylindrically

4308 Vol. 42, No. 21 / November 1 2017 / Optics Letters Letter

symmetric interference of plane waves, which cross the optical axis at a given conical angle, forming a high-intensity central lobe, surrounded by circular lobes of reduced intensity [17]. Significantly, the diameter of the central lobe is invariant along the propagation direction and has been shown to induce a stable (stationary) regime of nonlinear filamentation in transparent dielectrics [18], with homogeneous-induced damage along all regions of the beam where the intensity exceeds the threshold for void formation [13,19,20]. Although the use of picosecond Bessel beams with symmetric transverse beam profiles for such material separation has been previously reported in [8], high-resolution scanning electron microscopy (SEM) reveals that the cleaved surface does not precisely follow the line through the laser-drilled nanochannels. This is an important drawback because the channels that are left uncleaved act as weakening sites which increase the brittleness of the material after processing. To this end, we develop here a novel elliptical Bessel beam, where the transverse intensity distribution in the main lobe has an elliptical shape and which solves this problem.

The principle of our experiment is shown in the schematic illustration in Fig. 1(a). A suitably shaped elliptical Bessel beam is used to generate a linear array of nanochannels inside a glass sample. This is achieved in our case using single-shot illumination of circularly polarized 5 kHz amplified Ti:sapphire laser pulses at 800 nm to generate each nanochannel, while the sample is being linearly translated in the beam focus. Following this laser processing step, a weak applied force is used to cleave the sample along the induced stress plane. Figure 1(b) shows more details of the experimental setup.

The grating position in the compressor of our chirped pulse amplifier laser allowed us to vary the pulse duration in the range 120 fs–3 ps. In a preliminary study with circularly symmetric Bessel beams, we determined that a pulse duration of 2.3 ps associated to a sample translation speed of 25 mm/s was the best configuration for stealth nanomachining. The few-picosecond regime has indeed previously been shown to be more suitable for stealth nanomachining [8]. Circular polarization was generated with a quarter-wave plate just after the laser source, and the polarization is preserved through the rest of the setup [21]. The primary (circularly symmetric) Bessel beam is generated from a 0.5° axicon and without any additional beam shaping, demagnification leads to a circularly symmetric beam characterized by a cone angle of 16.5° and a central spot size of ∼1.0 μm full width at half-maximum extending over a longitudinal distance of 170 μm (in air, without any sample present). Ellipticity is introduced in the transverse profile by Fourier filtering of the primary Bessel beam, as illustrated in the exploded view shown in Fig. 1(b). Specifically, the removal of spectral components along a line in the y-direction yields a non-circularly symmetric intensity distribution with three strongly elliptical lobes. The effect of this filtering is easily calculated numerically and is shown in Fig. 2(a) at a distance of $z = 60$ μm from the focal plane of the microscope objective MO1 (distance where the sample would be positioned). A zoom of the central region is also shown to highlight the strong ellipticity of both the main intensity lobe and the side lobes. These calculated results are confirmed in the experimental characterization shown in Fig. 2(b), obtained by translating a second microscope objective to reconstruct the 3D field plane-by-plane. Note that the filtering induces energy loss of ∼30%, but all energy values given below are those measured at the sample site.

It is also possible to readily calculate (using the standard scalar beam propagation method for Fourier optics [22]) the expected longitudinal evolution of the elliptical Bessel beam, and this is shown in Figs. 2(c) and 2(d) for the XZ and YZ planes, respectively (in air). Corresponding experimental results are shown in Figs. 2(e) and 2(f). We clearly see the expected non-diffracting behavior of the shaped Bessel beam over a longitudinal extent of more than 100 μm. The experimental results show some longitudinal non-uniformity, but this has negligible effect on the generation of machined nanochannels provided the intensity exceeds the ionization threshold at all points where the sample is positioned.

Results showing the use of this setup for generating nanochannels in glass are shown in Fig. 3. Here, a 150 μm thick glass sample (Schott D263M borosilicate) is placed at the shaped Bessel beam focus and, through control of the incident pulse energy, we are able to generate either (a) one single channel (12 μJ energy when only the central lobe exceeds the ionization threshold) or (b) three channels simultaneously (18 μJ energy when all three central lobes exceed the void formation threshold). The results in Figs. 3(a) and 3(b) show that the surface features on the top side correspond to these two pulse energies, and the cross section in Fig. 3(c) shows the

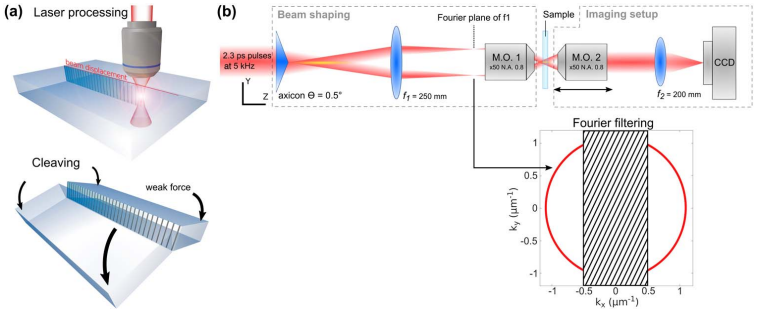

Fig. 1. (a) Illustration of the concept of stealth nanomachining. (b) Experimental setup for beam shaping and beam imaging. The primary Bessel beam generated from the axicon is expanded and spatially filtered in the Fourier plane before focusing to sub-micron dimensions with a microscope objective (MO1, ×50, NA 0.8). The shaded area corresponds to the region where we block light to remove a specific range of spatial frequencies. The 3D beam intensity distribution is reconstructed after scanning the beam with a second microscope objective (MO2).

Letter Vol. 42, No. 21 / November 1 2017 / Optics Letters 4309

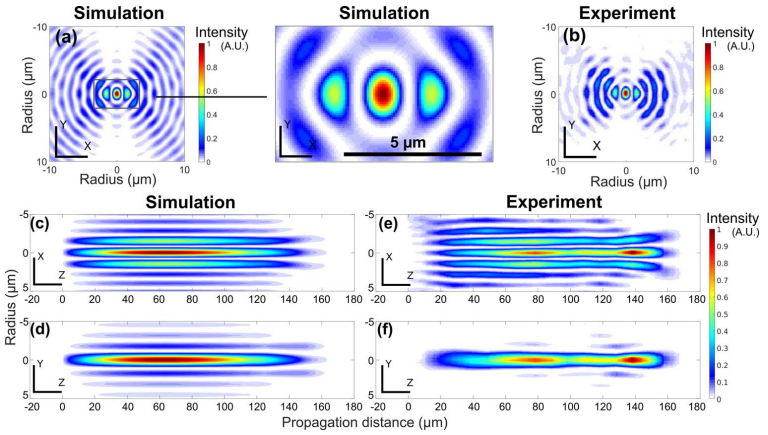

Fig. 2. Intensity distribution of the elliptical Bessel beam. (a) Numerical simulation of the beam cross section at propagation distance $z = 60$ μm from the focal plane of MO1. The inset shows a magnified view of the central part of the beam, featuring its elliptical central lobes. (b) Corresponding experimental profile. (c) to (f) Longitudinal intensity distributions in air in the XZ and YZ planes. (c) and (d) are numerical simulations, and (e) and (f) the corresponding experimental results.

longitudinal structure for the case of three channels after material milling using focused ion beam (FIB). Even with three lobes with the intensity 10^{13}–10^{14} W/cm^2, the propagation shows stable beam propagation through the full thickness of the sample. This shows that the elliptical Bessel beam preserves the main properties of propagation invariance of regular Bessel beams, even in the nonlinear ionization regime [18,19]. A careful FIB milling procedure allowed us to minimize the damage produced to the laser-produced channels [13]. High-resolution FIB images show a variation in diameter of about ∼50% along the length of the channel, understood from inhomogeneity of the on-axis beam intensity, as can be seen in Fig. 2(f).

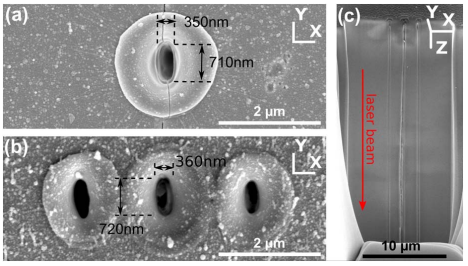

Fig. 3. SEM imaging of the laser-induced channel using single-shot illumination with an elliptical Bessel beam: (a) image of top surface damage produced by illumination with a pulse energy of 12 μJ. A single elliptic nanochannel is visible at the center of round-shaped ejected material, placed between two lateral index modifications (not visible under SEM) produced by the secondary lobes. (b) Image of top surface damage produced by illumination with a pulse energy of 18 μJ, showing the three nanochannels produced by the three main hot spots of the elliptical beam. (c) View of the longitudinal section of the channels shown in (b) after material removal by FIB milling over a depth of 30 μm. The laser beam is coming from the top; sample is observed with a 52° tilt. The three parallel channels corresponding to the three main hot spots are apparent.

The nanochannel ellipticity is an important feature for applications to stealth processing, where it is the induced material stress that enables the definition of a well-defined cleaving plane [23]. In particular, an elliptical hole in a solid structure enhances the stress contrast between the cleaving plane and the sides of the perforation, which can be approximately quantified through the stress concentration factor given by $\kappa = 1 + 2\varepsilon$ for an ellitpical hole of ratio ε [24]. This yields $\kappa = 5$ for an elliptical hole with $\varepsilon = 2$ compared to $\kappa = 3$ for a circular hole, suggesting a 66% stress enhancement. This stress enhancement is also much more localized near the tips of the elliptical profile which would be expected to lead to a significantly more well-defined stress plane.

We can also compare the properties of the machined samples when using circular and elliptical beams. After single-pass illumination along the y-axis at a constant speed of 25 mm/s, the samples were mechanically bent using a three-point flexure setup until they cleaved [25]. Samples processed with an elliptical Bessel beam typically need 50% less deflection for cleaving than those processed with a circular Bessel beam. We compare in Fig. 4 the samples under SEM microscopy. The left column shows the 3D view and side view of the sample processed after circular Bessel beam illumination. It is apparent that the cleavage occurred to one side of the line of channels (dashed white line) by a few micrometers. A full characterization over the samples reveals that the cleavage occurs randomly on either side of the line of the nanochannels. This is quantitatively confirmed by optical profilometry measurements, as shown in Fig. 4(c). In contrast, the elliptical Bessel beam processing produced samples in which cleaving occurred precisely along the line defined by the vertices of the ellipses due to the stress enhancement. The position of the cleaved surface follows the line to within less than 1 μm, all along the length and depth of the 10/10 samples characterized. We note that no difference was observed if the pressure was applied on the top or exit side of the samples for circularly symmetric and elliptical Bessel beams. We also stress

4310 Vol. 42, No. 21 / November 1 2017 / Optics Letters Letter

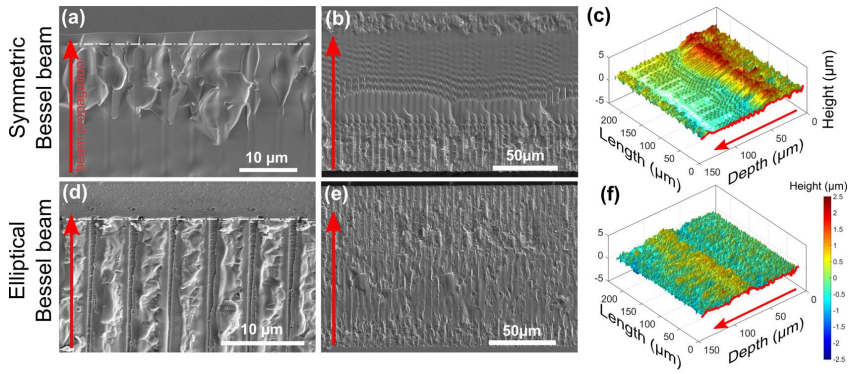

Fig. 4. Cleaved edge profiles of samples laser-processed with circularly symmetric (top line) and elliptical (bottom line) Bessel beams with a pulse energy of 12 µJ. The red arrows show the beam propagation direction. (a) and (d) SEM 52° tilted views at the sample exit face; the white dotted-dashed line shows the expected fracture line. (b) and (e) SEM 52° tilted full views of the samples' cleaved edges. In (e), nanochannels are open from the top surface to the exit surface. (c) and (f) Topography measurement of the edge surface with optical profilometry featuring flatter surface profiles for the elliptical Bessel beam processing (f).

that the results in Fig. 4 with symmetric and elliptical beams are obtained at the same energy, and the apparent reduced damage seen with symmetric beams is because cleaving occurs slightly off center in the channels. After averaging over the cleaved surface area at 12 µJ, surface roughness (root mean square) is lower for results using an elliptical Bessel beam (~0.5 µm) than using a circular Gaussian beam (~0.6 µm).

In conclusion, we have reported how the use of novel transverse beam shaping of non-diffracting beams can yield a propagation invariant regime at ablation-level intensities that generates elliptical nanochannels in glass after single-shot illumination. We have demonstrated that this property can be used to guide material cleaving with sub-micron precision. We also note that while nanochannels can be produced by femtosecond and picosecond illumination, only the longest pulse durations produce cleavable damages. This indicates that the thermal modification around the nanochannels plays a role in the fracture propagation. Additional work is needed to fully uncover the influence on cleaving of the nanochannel shape and density distribution around the channel. We anticipate that these results will foster further novel research in the nonlinear propagation of intense pulses with structured profiles, and new applications in laser materials processing.

Funding. FP7 Information and Communication Technologies (ICT) (619177, TiSaTD); H2020 European Research Council (ERC) (682032-PULSAR); Labex ACTION program, Agence Nationale de la Recherche (ANR) (ANR-11-LABX-0001-01); French RENATECH Network.

REFERENCES

1. R. R. Gattass and E. Mazur, Nat. Photonics **2**, 219 (2008).
2. S. Amoruso, R. Bruzzese, N. Spinelli, and R. Velotta, J. Phys. B **32**, R131 (1999).
3. M. Kumagai, N. Uchiyama, E. Ohmura, R. Sugiura, K. Atsumi, and K. Fukumitsu, IEEE Trans. Semicond. Manuf. **20**, 259 (2007).
4. J. Dudutis, P. Gečys, and G. Račiukaitis, Opt. Express **24**, 28433 (2016).
5. F. Hendricks, B. Bernard, and V. Matylitsky, Proc. SPIE **10094**, 1009417 (2017).
6. F. Ahmed, M. S. Lee, H. Sekita, T. Sumiyoshi, and M. Kamata, Appl. Phys. A **93**, 189 (2008).
7. F. Ahmed, M. S. Ahsan, M. S. Lee, and M. B. G. Jun, Appl. Phys. A **114**, 1161 (2013).
8. M. K. Bhuyan, O. Jedrkiewicz, V. Sabonis, M. Mikutis, S. Recchia, A. Aprea, M. Bollani, and P. D. Trapani, Appl. Phys. A **120**, 443 (2015).
9. K. Mishchik, C. J. Leger, O. D. Caulier, S. Skupin, B. Chimier, C. Hönninger, R. Kling, G. Duchateau, and J. Lopez, J. Laser Micro/Nanoeng. **11**, 66 (2016).
10. A. Champion, M. Beresna, P. Kazansky, and Y. Bellouard, Opt. Express **21**, 24942 (2013).
11. M. Sakakura, Y. Ishiguro, N. Fukuda, Y. Shimotsuma, and K. Miura, Opt. Express **21**, 26921 (2013).
12. S. Juodkazis, K. Nishimura, S. Tanaka, H. Misawa, E. G. Gamaly, B. Luther-Davies, L. Hallo, P. Nicolai, and V. T. Tikhonchuk, Phys. Rev. Lett. **96**, 166101 (2006).
13. L. Rapp, R. Meyer, R. Giust, L. Furfaro, M. Jacquot, P. A. Lacourt, J. M. Dudley, and F. Courvoisier, Sci. Rep. **6**, 34286 (2016).
14. N. Götte, T. Winkler, T. Meinl, T. Kusserow, B. Zielinski, C. Sarpe, A. Senftleben, H. Hillmer, and T. Baumert, Optica **3**, 389 (2016).
15. A. Couairon and A. Mysyrowicz, Phys. Rep. **441**, 47 (2007).
16. L. Sudrie, A. Couairon, M. Franco, B. Lamouroux, B. Prade, S. Tzortzakis, and A. Mysyrowicz, Phys. Rev. Lett. **89**, 186601 (2002).
17. D. McGloin and K. Dholakia, Contemp. Phys. **46**, 15 (2005).
18. P. Polesana, M. Franco, A. Couairon, D. Faccio, and P. D. Trapani, Phys. Rev. A **77**, 043814 (2008).
19. M. K. Bhuyan, F. Courvoisier, P. A. Lacourt, M. Jacquot, R. Salut, L. Furfaro, and J. M. Dudley, Appl. Phys. Lett. **97**, 081102 (2010).
20. F. Courvoisier, R. Stoian, and A. Couairon, Opt. Laser Technol. **80**, 125 (2016).
21. Y. Zhang, Appl. Phys. B **90**, 93 (2008).
22. J. W. Goodman, *Introduction to Fourier Optics* (McGraw-Hill, 1996).
23. A. R. Collins and G. M. O'Connor, Opt. Lett. **40**, 4811 (2015).
24. W. C. Young and R. G. Budynas, *Roark's Formulas for Stress and Strain*, 7th ed. (McGraw-Hill, 2002).
25. K. Nattermann, N. Neuroth, and R. J. Scheller, *The Properties of Optical Glass* (Springer, 1998), pp. 179–200.

C.2/ NANOCANAUX ELLIPTIQUES POUR UN CLIVAGE OPTIMAL.

APPLIED PHYSICS LETTERS **111**, 231108 (2017)

Submicron-quality cleaving of glass with elliptical ultrafast Bessel beams

R. Meyer, R. Giust, M. Jacquot, J. M. Dudley, and F. Courvoisier[a)]
FEMTO-ST, University Bourgogne Franche-Comté UMR-6174, 25030 Besancon, France

(Received 11 October 2017; accepted 19 November 2017; published online 6 December 2017)

The material processing technique of "stealth" nanomachining is based on translating a longitudinally extended beam such as a Bessel beam into a transparent sample to generate extended nanochannels, which leads to subsequent internal stress that facilitates high quality cleaving. In this letter, we compare the quality of such cleaving in glass samples obtained using Bessel beams with both circularly symmetric and elliptical transverse profiles. We find that the use of an elliptical Bessel beam generates elliptical nanochannels, which greatly improves the cleavage quality and cuts material strength by aligning the centre of the cleavage plane with the centre of the machined channels. These results are interpreted using numerical simulations that show how elliptical nanochannels enhance the intensity and localization of the tensile stress distribution in glass under bending when compared to channels with circular cross-sections. *Published by AIP Publishing.*
https://doi.org/10.1063/1.5008921

The high peak power of infrared ultrafast laser pulses results in strongly localized nonlinear ionization and energy deposition within transparent materials.[1] Depending on the deposited energy, a range of material damage can be observed, including index modification,[2] voids,[3] or cracks.[4] Depending on the energy and focussing parameters, an intense ultrafast pulse can also undergo dynamic filamentation,[5,6] which can be combined with high-speed scanning to generate a series of sub-micron channels within the bulk of a material which together form a weakened plane allowing the material to cleave.[7] This technique leads to improved cleaved surface quality and edge quality compared to other techniques based on crack formation after illumination by ns or sub-ns pulses[8,9] or based on V-groove surface ablation[10] because material separation occurs without either material loss or debris.

In this context, the use of "nondiffracting" beams has opened up a number of opportunities in laser processing of transparent materials. Such nondiffracting beams are formed by an interference pattern that produces one or several high intensity spots that maintain their high intensity over an extended propagation distance.[11–13] These structures are remarkably resistant to nonlinear deformation, provided that the interference angle and nonlinear losses are high enough. In this case, the losses in the central intensity lobe are compensated by a flow of energy from the other beam lobes.[14–17] Perhaps the most well-known of such beams are the family of Bessel beams, which have found important applications in nano-channel formation.[18–23]

Bessel beams have also been applied to "stealth" material processing[8] to induce cleavage in transparent dielectrics.[24] These experiments used picosecond pulses and a circularly symmetric transverse profile, but, as we show here, the use of such a symmetric Bessel beam yields a cleavage plane that does not exactly follow the line of machined channels. In this Letter, however, we demonstrate how the use of an elliptical beam profile to generate elliptical nanochannels greatly improves cleave uniformity by aligning the cleave plane with the channels. Using 3-point bending tests, we quantitatively compare the cleave characteristics obtained using elliptical and circularly symmetric Bessel beams, showing improved cleave quality with elliptical beams. Our results represent a significant advance in the use of elliptical beams for machining applications compared to previous studies that have studied elliptical surface chipping[25] and crack formation associated with elliptical damage regions.[9] In addition, our numerical modelling which shows higher stress contrast associated with elliptical channels can also explain recent proof-of-principle cleavage studies using elliptical Bessel beams (EBBs).[26]

To begin, we first show experimental results of cleaving in glass using symmetric Bessel beam illumination to highlight the particular problem we aim to address. The experimental setup here is very similar to that described by Meyer *et al.*, [26] using stretched 2.3 ps pulses from an amplified Ti:Sapphire laser system at a central wavelength of 800 nm and a repetition rate of 5 kHz. Stretched pulses in the picosecond regime were previously shown to lead to good cleavability of samples with stealth nanomachining.[24] Zeroth order circularly symmetric Bessel beams were produced by an axicon lens, further demagnified by a telescope arrangement so as to generate a Bessel beam of cone angle 16.5°, Bessel zone length 150 μm (in air), and central spot diameter 1.0 μm. Figure 1(a) shows scanning electron microscopy (SEM) images of a typical cleaved surface obtained using a pulse energy of 18 μJ. Here, the borosilicate glass sample (Schott D263M) of thickness 150 μm was translated perpendicular to the beam so as to generate a line of circular nanochannels of diameter ∼320 nm and separation 5 μm. The channels extend over the full thickness of the sample. Cleavage was obtained by applying mechanical pressure in a 3 point bending setup (see Fig. 2).

The figure shows clearly how the cleavage plane does not pass through the centers of the machined nanochannels but is rather displaced by ∼2 μm. Moreover, the cleavage does not

[a)]Author to whom correspondence should be addressed: francois.courvoisier@femto-st.fr

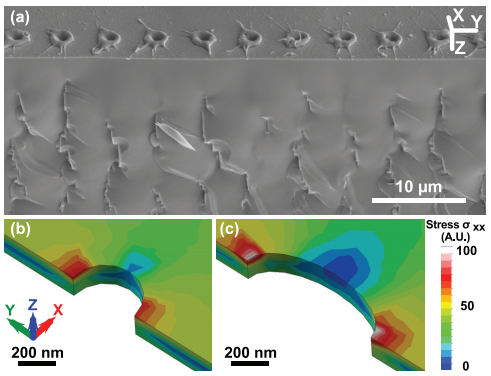

FIG. 1. (a) Scanning electron microscopy image of the cleaved glass sample using a pulse energy of 18 μJ with circularly symmetric Bessel beams. It is clear that the cleaved plane does not pass through the channels (along which cleaving might be expected). (b) and (c) show the results from numerical modelling of the stress σ_{xx} induced in a glass slide under bending when it is perforated by: (b) a cylindrically symmetric 360 nm diameter channel and (c) an elliptical channel with major axis 720 nm and minor axis 360 nm. Note that bending is around the y-axis.

occur along a line parallel to the centers of the nanochannels but rather it shows random variation. To understand these results and to consider how they can be improved using elliptical nanochannels, we have performed numerical modelling of how the transverse cross-section of the channels impacts the stress distribution observed under bending for (b) circular and (c) elliptical nanochannels. This modelling used SolidWorks^{TM} software with a channel diameter of 360 nm for the circular case and channel dimensions of $720 \times 360\,\text{nm}^2$ for the elliptical case[26] and considered a channel depth of 150 nm. The stress was calculated numerically from the (tensor) linear elasticity equation for conditions of static equilibrium with pressure uniformly applied along the centre-line of the sample with both side ends maintained fixed. Note that full modelling over the experimental channel depth of 150 μm is computationally prohibitive, but these modelling results at a reduced depth clearly show the qualitative difference between the two cases.

The results show the calculated tensile stress tensor component σ_{xx} for bending around the y-axis. For the circularly symmetric channel shown in Fig. 1(b), it is apparent that the stress is distributed over a wide region, reaching its half-maximum (~40 a.u.) more than 200 nm away from the centre where cleaving might intuitively be expected. This observation explains the results in Fig. 1(a), which show how the cleaving is not guided through the center of the circularly symmetric channels. In contrast, as shown in Fig. 1(c) for an elliptical hole with the major axis twice longer than the minor axis, the computed stress shows: (i) enhancement compared to the previous situation by a factor ~30% and (ii) a maximum stress (~100 a.u.) localized at the extremities of the ellipse major axis and half-maximum (~50 a.u.) reached closer to the Oy axis (~100 nm). These results suggest that the use of elliptical nanochannels should provide a more precisely localised cleavage plane at the channel centres, and indeed, this is what we see in our experiments. (Note that as we discuss further below, the elliptical Bessel beam used in our experiments actually shows two lateral lobes that can generate additional elliptical nanochannels at high input pulse energy (18 μJ).[26] We have also numerically modelled the stress induced by such side channels, and no qualitative difference was observed. This is attributed to the fact that side channels are placed at a relatively long distance (~1.7 μm) from the main central nanochannel.)

We now present the results of our experiments where we have performed a detailed comparison between circularly symmetric and elliptical beams applied to cleaving of glass. The experimental laser parameters used were described above. For the generation of Bessel beams with an elliptical transverse profile, we use Fourier filtering to remove a specific range of spatial frequencies.[26] The experimental approach is shown in Fig. 2(a). We first laser-processed the samples by a single pass at a constant speed of $v = 25$ mm/s at a repetition rate of 5 kHz over the full width of the $20 \times 20\,\text{mm}^2$ samples. The values of speed and pulse duration were chosen because we evaluated them as the best conditions for cleaving glass with symmetric Bessel beams. We wished to retain these parameters when using the elliptical Bessel beam configuration so as to isolate clearly the

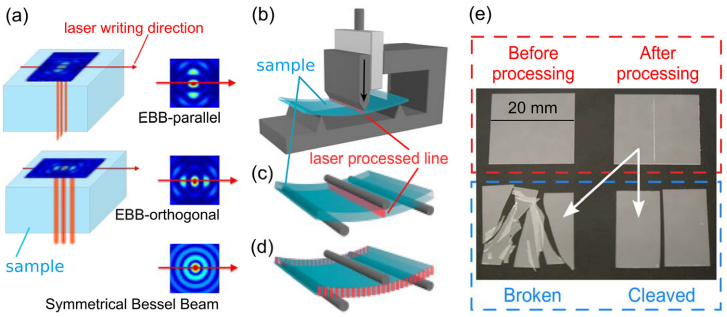

FIG. 2. Concept of the experiment. (a) Laser writing configurations for elliptical and circularly symmetric Bessel beams. (b) 3-line bending test. The glass sample is bent by a blade moved by a translation stage with 5 μm precision. (c) and (d) Geometrical configuration of the laser processed line towards the bending axis. (c) First experiment to compare the ability of the beams to induce cleaving. (d) Second experiment to compare the ability for bending of laser-processed samples. (e) Summary of the experimental procedure for processing and sorting the samples.

advantage of the beam ellipticity. In building the setup and choosing experimental parameters, we have ensured that the samples, the translation stage, and the input Bessel beam with circular polarization were identical for x and y scanning in the plane transverse to the pulse propagation such that symmetric Bessel beams gave indistinguishable results if the samples were processed along the x or y axis. The translation motion was begun before the sample and finished afterwards to avoid any variation in speed over the sample area. The loss of energy due to filtering to produce the elliptical Bessel beam was compensated, and the pulse energies indicated below were always measured at the sample site.

Then, after laser-processing [Fig. 2(a)], we performed cleaving with three-point bending as presented in Fig. 2(b). The glass sample was bent by a razor blade mounted on a micrometric translation stage. The position of the blade was precisely adjusted under a microscope over the laser-processed line within less than 10 μm [Fig. 2(c)]. To quantify the ability to cleave or to bend, we recorded the value of the deflection needed to fracture the sample. Fracture may then occur in two ways [cf. Fig. 2(e)]: (i) cleaving, which means that the sample separates into two pieces following the laser-processed line, and (ii) breaking, which covers all other cases (fracture not followed by the laser-processed line, separation into more than two pieces, etc).

To compare the influence of the ellipticity of the nanochannels on the cleaving properties, the samples were first laser-processed (across their centreline) with the three beam configurations as shown in Fig. 2(a): Elliptical Bessel Beam (EBB) with the main lobe major axis parallel to the translation direction, y-axis, referred to as EBB-parallel (EBB-p); elliptical Bessel beam with the main lobe major axis orthogonal to the scanning direction (x-axis) which we will refer to as EBB-orthogonal (EBB-o); and circularly Symmetric Bessel Beam (SBB).

In Fig. 3, we plot the deflection to fracture as a function of pulse energy (6, 12, and 18 μJ) for the three illumination conditions mentioned above [Fig. 1(a)]. For each illumination

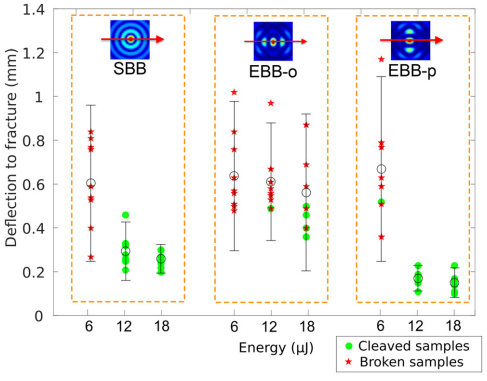

FIG. 3. Values of the deflection needed to fracture the samples under the 3 point bending test as a function of beam shape and pulse energy. Cleaved samples are represented as green disks, broken ones by red stars, and the average value by black circles. Left: Symmetric Bessel Beam; center: EBB-orthogonal; right: EBB-parallel.

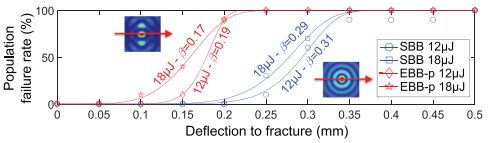

FIG. 4. Weibull cumulative distribution fits for the cleavability measurements shown in Fig. 3.

condition and pulse energy, 10 samples were processed. The results are shown as green circles if the sample cleaved and as red stars if it broke. For each set of 10 measurements, the mean value and standard deviation are shown in black. Figure 3 shows that SBB with a pulse energy of 6 μJ never led to cleaving, while this was possible 10 out of 10 times for pulse energies of 12 μJ and 18 μJ. The lower value of deflection to fracture obtained for the case of 18 μJ pulse energy in comparison to 12 μJ indicates that cleaving requires smaller pressure for the higher pulse energy and the reduced standard deviation features a higher reproducibility.

The EBB-orthogonal beam illumination only rarely leads to cleaving whatever the pulse energy. This is in accordance with the numerical simulation of the stress distribution presented before: the stress is concentrated at the vertices of the elliptical channels, which obviously poorly contributes to guiding a fracture in a direction perpendicular to the major axis of the ellipse. In this configuration, the cleaving plane cannot be guided which deteriorates the ability to cleave.

In contrast, the EBB-parallel beam yields 100% cleaving at 12 and 18 μJ, with much lower deflection as those obtained with Symmetric Bessel beams, as expected from our numerical simulations. In Fig. 4, we plot the measurements of Fig. 3 for SBB and EBB-parallel at 12 and 18 μJ as Weibull cumulative distributions of the deflection at fracture d: $W(d) = 1 - \exp\left(\left(\frac{-d}{\beta}\right)^{\alpha}\right)$. This distribution is characterized by two parameters α and β. Parameter β represents the value of deflection at which statistically 63% of the samples break, while α is the shape parameter which is inversely proportional to distribution variance.[27] The lowest β parameter and highest α are the preferred configuration for application to material separation. These parameters are summarized in Table I. It is clear from Fig. 4 that the EBB-parallel illumination, shown in red, provides steeper ($\alpha > 7$) transitions of the distribution with β reduced by half compared to the case of the symmetric Bessel beam, in blue.

SEM observations of the cleaved edge surface produced after EBB-parallel processing show that the cleaving is perfectly guided by the line of ellipses for all samples produced at 12 and 18 μJ; all channels are cleaved through from top to exit sides and all along the 20 mm length of the samples.

TABLE I. Weibull parameters corresponding to the fits of experimental data shown in Fig. 4.

	SBB		EBB-parallel	
Energy (μJ)	12	18	12	18
α (no unit)	9.4	7.7	10.5	7.0
β (mm)	0.31	0.29	0.19	0.17

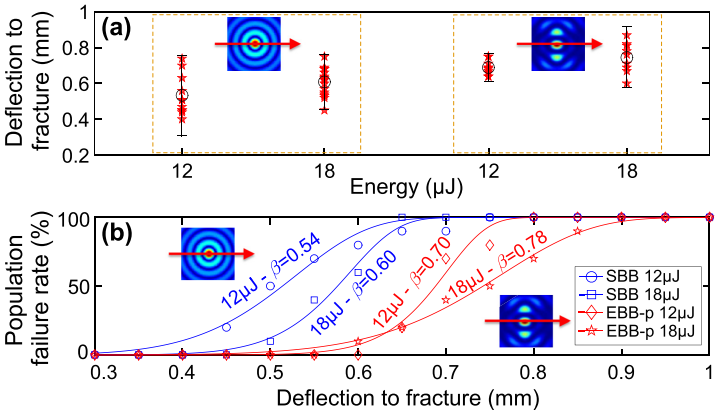

FIG. 5. (a) Values of the deflection needed to fracture the samples prepared by cleaving on 2 sides, as a function of beam shape and pulse energy. (b) Weibull cumulative fits of the same experimental data.

SEM images of the proof-of-principle results were reported in the study by Meyer *et al.*,[26] and here, we can evaluate the impact of the sub-micron precision cleaving on the strength of the separated parts.

For this, a second series of samples was processed so as to define two parallel laser-processed edges to be tested. Each sample was laser-illuminated along two lines at a distance of 12 mm of each other. Then, the samples were fractured under the 3-point bending test with the blade placed perpendicular to these two lines as shown in Fig. 2(d). Obviously, in this case, all samples break since there is no weakening line to guide the fracture. We note that the distance between the edges to be tested is an important parameter for the reproducibility of the measurement. We chose a distance of 12 mm since we determined that above 8 mm, the standard deviations obtained were significantly below mean values.

For this experiment, we select only the illumination conditions that led to a high rate of cleaved samples, i.e., the SBB illumination and EBB-parallel, for both energies of 12 and 18 μJ. Figure 5 shows the results of the 3-point bending test as described above (a) and plotted as a Weibull distribution (b). For applications, the best conditions are those producing samples that contain the minimal amount of micro-/nano-fractures and can undergo high bending without breaking. We observe that the EBB-parallel shown with red lines produces samples that can undergo 30% higher bending than those produced by SBB illumination whatever the input pulse energy. This demonstrates that the cleaving by the EBB-parallel based on elliptical channels leaves less defects in the cleaved glass.

In conclusion, our results show that elliptical Bessel beams used to machine elliptical nanochannels with major access parallel to a targeted cleave direction can strongly improve material separation because of an enhanced and more localized stress distribution. After cleaving, we also showed that the edges are stronger in comparison to processing with symmetric Bessel beams. For the same inter-channel spacing (5 μm), high-repetition rate (100s of kHz) industrial lasers are expected, enabling processing speeds exceeding 1 meter per second. We anticipate that these results will impact the field of laser nano-processing of transparent materials and will foster research on the understanding of material properties at nano-scales around the laser-processed nanochannels.

The research leading to these results has received funding from the European Union Seventh Framework Programme [ICT 2013.3.2 Photonics] under Grant Agreement No. 619177 TiSa-TD and from the European Research Council (ERC-CoG-682032-PULSAR). This work has been performed in cooperation with the Labex ACTION program, contract ANR-11-LABX-0001-01, and was partly supported by the French RENATECH network.

[1]R. R. Gattass and E. Mazur, Nat. Photonics **2**, 219 (2008).
[2]G. D. Valle, R. Osellame, and P. Laporta, J. Opt. A: Pure Appl. Opt. **11**, 013001 (2009).
[3]S. Juodkazis, K. Nishimura, S. Tanaka, H. Misawa, E. G. Gamaly, B. Luther-Davies, L. Hallo, P. Nicolai, and V. T. Tikhonchuk, Phys. Rev. Lett. **96**, 166101 (2006).
[4]M. Sakakura, Y. Ishiguro, N. Fukuda, Y. Shimotsuma, and K. Miura, Opt. Express **21**, 26921 (2013).
[5]L. Sudrie, A. Couairon, M. Franco, B. Lamouroux, B. Prade, S. Tzortzakis, and A. Mysyrowicz, Phys. Rev. Lett. **89**, 186601 (2002).
[6]S. Tzortzakis, L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, A. Couairon, and L. Bergé, Phys. Rev. Lett. **87**, 213902 (2001).
[7]F. Ahmed, M. S. Lee, H. Sekita, T. Sumiyoshi, and M. Kamata, Appl. Phys. A **93**, 189 (2008).
[8]M. Kumagai, N. Uchiyama, E. Ohmura, R. Sugiura, K. Atsumi, and K. Fukumitsu, IEEE Trans. Semicond. Manuf. **20**, 259 (2007).
[9]J. Dudutis, P. Gečys, and G. Račiukaitis, Opt. Express **24**, 28433 (2016).
[10]S. Nisar, L. Li, and M. A. Sheikh, J. Laser Appl. **25**, 042010 (2013).
[11]J. Durnin, J. Miceli, Jr., and J. H. Eberly, Phys. Rev. Lett. **58**, 1499 (1987).
[12]M. V. Berry and K. McDonald, J. Opt. A: Pure Appl. Opt. **10**, 035005 (2008).
[13]C. Xie, R. Giust, V. Jukna, L. Furfaro, M. Jacquot, P.-A. Lacourt, L. Froehly, J. Dudley, A. Couairon, and F. Courvoisier, J. Opt. Soc. Am. A **32**, 1313 (2015).
[14]M.-A. Porras, C. Ruiz-Jiménez, and J.-C. Losada, Phys. Rev. A **92**, 063826 (2015).
[15]P. Polesana, M. Franco, A. Couairon, D. Faccio, and P. D. Trapani, Phys. Rev. A: At. Mol. Opt. Phys. **77**, 043814 (2008).
[16]V. Jukna, C. Milian, C. Xie, T. Itina, J. Dudley, F. Courvoisier, and A. Couairon, Opt. Express **22**, 25410 (2014).
[17]C. Xie, V. Jukna, C. Milin, R. Giust, I. Ouadghiri-Idrissi, T. Itina, J. M. Dudley, A. Couairon, and F. Courvoisier, Sci. Rep. **5**, 8914 (2015).
[18]M. K. Bhuyan, F. Courvoisier, P. A. Lacourt, M. Jacquot, R. Salut *et al.*, Appl. Phys. Lett. **97**, 081102 (2010).

[19]M. K. Bhuyan, P. K. Velpula, J. P. Colombier, T. Olivier, N. Faure, and R. Stoian, Appl. Phys. Lett. **104**, 021107 (2014).
[20]W.-J. Tsai, C.-J. Gu, C.-W. Cheng, and J.-B. Horng, Opt. Eng. **53**, 0515031 (2014).
[21]S. Mitra, M. Chanal, R. Clady, A. Mouskeftaras, and D. Grojo, Appl. Opt. **54**, 7358 (2015).
[22]L. Rapp, R. Meyer, R. Giust, L. Furfaro, M. Jacquot, P. A. Lacourt, J. M. Dudley, and F. Courvoisier, Sci. Rep. **6**, 34286 (2016).
[23]F. Courvoisier, R. Stoian, and A. Couairon, Opt. Laser Technol. **80**, 125 (2016).
[24]M. K. Bhuyan, O. Jedrkiewicz, V. Sabonis, M. Mikutis, S. Recchia, A. Aprea, M. Bollani, and P. D. Trapani, Appl. Phys. A **120**, 443 (2015).
[25]A. R. Collins and G. M. O'Connor, Opt. Lett. **40**, 4811 (2015).
[26]R. Meyer, M. Jacquot, R. Giust, J. Safioui, L. Rapp, L. Furfaro, P.-A. Lacourt, J. M. Dudley, and F. Courvoisier, Opt. Lett. **42**, 4307 (2017).
[27]W. Weibull, J. Appl. Mech.-T ASME **18**, 293 (1951).

View publication stats

C.3/ CLIVAGE DE VERRE DE GRANDE ÉPAISSEUR.

Applied Physics Letters ARTICLE scitation.org/journal/apl

Extremely high-aspect-ratio ultrafast Bessel beam generation and stealth dicing of multi-millimeter thick glass

Cite as: Appl. Phys. Lett. **114**, 201105 (2019); doi: 10.1063/1.5096868
Submitted: 20 March 2019 · Accepted: 5 May 2019 ·
Published Online: 23 May 2019

View Online Export Citation CrossMark

R. Meyer, L. Froehly, R. Giust, J. Del Hoyo, L. Furfaro, C. Billet, and F. Courvoisier[a)]

AFFILIATIONS

FEMTO-ST Institute, Univ. Bourgogne Franche-Comté, CNRS, 15B Avenue des Montboucons, 25030 Besançon Cedex, France

[a)]**Electronic mail:** francois.courvoisier@femto-st.fr

ABSTRACT

We report on the development of an ultrafast beam shaper capable of generating Bessel beams of high cone angle that maintain a high intensity hot spot with subwavelength diameter over a propagation distance in excess of 8 mm. This generates a high intensity focal region with extremely high aspect ratio exceeding 10 000:1. The absence of intermediate focusing in the shaper allows for shaping very high energies, up to Joule levels. We demonstrate a proof of principle application of the Bessel beam shaper for stealth dicing of thick glass, up to 1 cm. We expect that this high energy Bessel beam shaper will have applications in several areas of high intensity laser physics.

Published under license by AIP Publishing. https://doi.org/10.1063/1.5096868

Glass and transparent dielectrics are ubiquitous in modern technology. They are used for consumer electronics, microelectronics, automotive, and construction. High speed and high quality cutting of thin and thick glass is therefore an important technological problem. Interestingly, the recent development of stealth dicing of glass has enabled cleaving glass at speeds in the range of 10–100 cm/s using lasers with a high repetition rate of several 100's of kHz.[1,2] Stealth dicing is a two-step technique where the first step consists of generating with individual ultrafast laser pulses a series of high aspect ratio nanochannels which define a weakening plane, serving as a fracture initiator. The second step consists of stressing the material, for instance, with a small bending, which is generally sufficient to cleave the glass along the predefined plane. The process is ablation-free, does not generate debris, and is extremely fast.

Infrared ultrafast Bessel beams are ideal tools to process transparent materials with high aspect ratios such as index modifications[3,4] or high aspect ratio nanochannels and voids.[5,6] They are formed by the cylindrically symmetric interference of plane waves with wavevectors distributed on the generatrix of a cone.[7] In the nonlinear regime at high intensities, Bessel beams are quasi distortion-free, provided the cone angle is sufficiently high.[8] The high stability of Bessel beams and the confinement of the intense laser-matter interaction make it possible to create with a single laser pulse a nanochannel with a diameter typically ranging between 200 and 800 nm,[5] and has led to a number of advances in terms of materials processing via bulk excitation.[9,10] Stealth dicing using Bessel beams or filaments is now widely used for glass and sapphire separation.[11–14] Until here, stealth dicing has been limited to thicknesses typically of submillimeter. The limit is the available Bessel beam length.

Bessel beams also have a number of different other applications in the field of nonlinear optics,[15,16] where they are expected to provide natural tools for amplification with wideband tunability via Kerr instability[17] and high intensity laser physics.[18] Ultrafast Bessel pulses are also emerging in the field of particle acceleration,[19,20] because the interference creates along the optical axis a high intensity peak whose velocity can be tuned and can even exceed the speed of light.[21–26] Therefore, Bessel beam shapers that can sustain high intensities and high energy over several millimeters are desirable.

At present, most of Bessel beam shaping techniques for high intensity applications are based on the imaging of an initial Bessel beam formed via an axicon, a spatial light modulator, or a diffractive optical element, which is then demagnified using relay lenses.[1,25,27,28] This approach has several benefits: the Bessel beam is created at a distance from the last optics, enabling a working distance to process thick materials or realize the generation of the Bessel beam with a smooth injection in the nonlinear medium.[29] In addition, the demagnification factor of the imaging system effectively increases the cone angle of the Bessel beam. This makes possible generating highly focused beams even if the initial shaping element has relatively low spatial frequencies or even if it is difficult to fabricate high angle axicons.[30]

Published under license by AIP Publishing

Applied Physics Letters ARTICLE scitation.org/journal/apl

However, this approach has important drawbacks. First, the Bessel beam length after imaging is reduced by the square of the magnification factor, which drastically reduces the length that can be reached when high angles are needed and high magnifications are used. Second, and most importantly, the imaging techniques make the first Bessel beam prone to distortions during its propagation in air and increase the risks of laser damage. Indeed, during imaging, the Bessel beam field is Fourier-transformed several times. The Fourier transform of a Bessel beam is an annulus. Its width is proportional to $1/L_B$, L_B being the length of the Bessel zone.[31] Therefore, high intensities can be reached either within the initial Bessel beam, and/or in the relay optics. Kerr effect, thermal lensing, or optical damage occur when high peak power and high average power pulses are used.

Here, we develop a Bessel beam shaper that has no intermediate focus and is capable of handling extremely high energies. It improves the Bessel beam zone length by two orders of magnitude for a high angle of 23° similar to state of the art for single shot nanochannel machining.[5] Its working distance is adjustable, and the full system is much more compact than those involving relay lenses. We experimentally characterize the Bessel beam distribution up to 1 mJ in air and show it is constant. We demonstrate a proof of principle application for stealth dicing of thick glass, where we reached cleaving up to 1 cm thick soda-lime glass.

The laser source is a Ti:Sapphire Chirped-Pulse Amplified (CPA) laser, Coherent Legend USP, emitting ∼30 fs pulses at a central wavelength of 800 nm, a pulse energy of 5 mJ, and a repetition rate of 1 kHz. The pulses can be temporally compressed up to the Fourier transform limit or stretched using the compressor of the CPA, and were characterized just before the beam shaper using an autocorrelator. The concept of the Bessel beam shaper is shown in Fig. 1. We use a combination of three high-purity fused silica axicons: the first two are, respectively, negative and positive with the same wedge angle α. This transforms the input Gaussian beam, with a waist $w_0 = 4$ mm (i.e., radius at $1/e^2$) from the laser source into a thick annulus of collimated light propagating parallel to the optical axis. In the framework of geometrical optics, the width of the annulus is the waist w_0 of the input Gaussian beam; the diameter is determined by the axicons' wedge angle and the distance d between the first two axicons. The cone angle θ is determined only by the wedge angle β and index $n_{ax} = 1.45$ of the last axicon,

$$\theta = \arcsin\left(n_{ax}\sin\left(\beta - \arcsin\left(\frac{\sin\beta}{n_{ax}}\right)\right)\right). \quad (1)$$

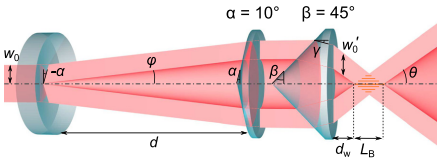

FIG. 1. Schematic representation of the beam shaper which is formed by a pair of ±10° axicons and a third axicon with 45° wedge angle. The Bessel beam of length L_B and angle θ is generated at a working distance d_w from the last axicon.

The typical length of the Bessel zone L_B is determined by

$$L_B = w_0(1 + \tan\beta\tan\gamma)/\tan\theta. \quad (2)$$

Similarly, the working distance d_w is evaluated from geometrical optics as

$$d_w = \frac{d\tan\varphi(1 + \tan\beta\tan\gamma) - e_{ax}\tan\gamma}{\tan\theta}, \quad (3)$$

in which e_{ax} stands for the third axicon thickness (tip to plane).

With the experimental values $\alpha = 10°$, $\beta = 45°$, $e_{ax} = 17.8$ mm, and $d = 10$ cm, we get $\varphi = 4.6°$, $\gamma = 15.8°$, $\theta = 23.3°$, $d_w = 12.2$ mm, and $L_B = 9.7$ mm. Our concept is extremely compact because the full length of the beam shaper is ∼15 cm, which is much smaller than the Bessel beam shapers based on relay imaging, whose length typically exceeds 1 m.[25] Because of the high angle of the last axicon, it is oriented with the tip to the laser source to prevent total internal reflection. In this configuration, the distance d must be sufficiently large, so that the Bessel beam is formed out of the axicon.

We note that a close concept has been developed by another group,[32] used in Optical Coherence Tomography (OCT) imaging[33] and recently applied to induce up to 10 mm long modifications in glass.[34] However, the latter concept involves a first axicon in focusing geometry, such that nonlinearities, thermal lensing, and optical damage, that we aim to avoid here, might happen for high average input power. The detrimental disruptions in the modifications that are reported to prevent cleaving might also arise from a too low cone angle and/or detrimental nonlinearities.[8]

We remark that all along the optical path in the beam shaper, the pulse energy is spread over areas that remain on the order of a few square centimeters, such that with a typical damage threshold of optics of several Joules per square centimeters, the beam shaper is expected to handle extremely high pulse energies close to the Joule level. With 1 J illumination at 50 fs pulse duration, the peak intensity reached in the Bessel beam would be on the order of 10^{18} W cm^{-2}, which is relevant for high energy physics applications. Similarly, because the pulse energy is quasi-uniformly spread over the axicon's surfaces, thermal lensing is largely reduced and its potential focal length would be large, with negligible impact on the Bessel beam structure.

Experimental characterization of the ultrafast beam was performed via an imaging setup made of two lenses ($f_1 = 3.6$ cm, $f_2 = 1$ m) in a confocal configuration, such that the beam is imaged onto a camera. The magnification of this imaging setup is 27.4. The first lens is of 2 in. diameter, so that the imaging has a high numerical aperture of 0.58, exceeding the Bessel cone angle. The longitudinal position of the imaging setup is controlled by a motorized translation stage. This allows for scanning the beam over a range exceeding 2 cm. Neutral density filters are placed in the optical path of the imaging setup, so as to avoid saturation of the CCD sensor. The damage threshold of the imaging setup is limited to an output pulse energy of 1 mJ (because of the intermediate focusing involved in the imaging), but we could operate the Bessel beam shaper up to the maximal pulse energy available, i.e., 5 mJ of input pulse energy.

Figure 2 shows experimental characterizations of the beam with different input pulse energies ranging between 12 μJ and 1 mJ with compressed 50 fs pulses. The characterization is shown with a log scale, so as to enhance the visualization of the low-intensity parts and

Published under license by AIP Publishing

Applied Physics Letters ARTICLE scitation.org/journal/apl

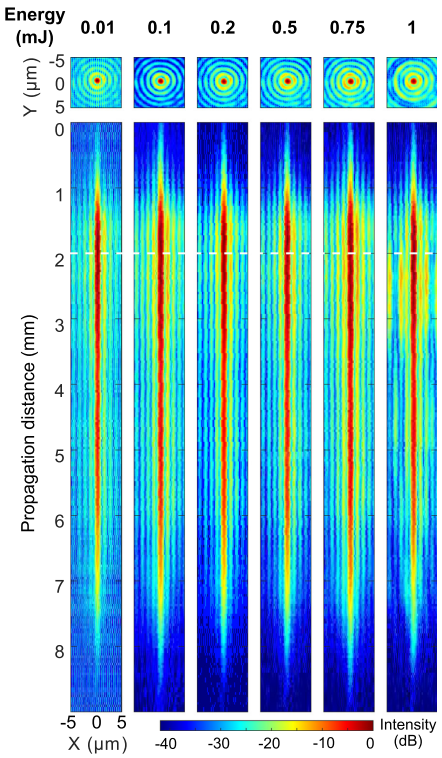

FIG. 2. Fluence distribution maps of the Bessel beam in air for different energies from 12 μJ to 1 mJ. The maps are displayed in a logarithmic scale. The white dashed line on longitudinal sections shows the plane where the maximum intensity is reached, for which we show the beam transverse profiles.

show the high quality of the beam even outside the central lobe. We see the high parallelism and roundness of the profiles in the cross-cuts. The quality of axicon manufacturing is an important parameter. Imperfect axicons generate a nondiffracting intensity pattern with multiple hotspots unusable for applications. The Bessel beam has a homogeneous transverse distribution over its ~8 mm range in air, in agreement with the model described above. This makes the aspect ratio of the beam to be of >10 000:1 because the central spot diameter is of 740 nm FWHM. The aspect ratio is two orders of magnitude higher than previously achieved with telescopic arrangements for nearly the same cone angle of 23.3°.

The beam profile does not vary when the pulse energy is increased, evidencing the absence of distortion in the optical system. In addition, we have experimentally verified that varying d and w_0, respectively, changes the working distance d_w and the length of the Bessel zone L_B, without modifying the beam transverse cross-section.

Now, we demonstrate a proof of principle application of the high energy Bessel beam shaper for stealth dicing of thick glass. For stealth dicing, high cone angles have been shown to be essential for high quality cleaving,[1] but one of the key limitations for thick glass dicing is to generate material modification on a significant part of the thickness of the material. We demonstrate here that the multimillimeter long Bessel beam allows for glass separation up to 10 mm soda-lime glass.

The parameter space is potentially very large, and we restricted our study by choosing a fixed translation speed of 5 mm s^{-1} with 1 kHz repetition rate, so that individual Bessel pulses create material modifications separated by 5 μm, as found nearly optimal in other studies.[12,35] We used a fixed input pulse energy of 2.5 mJ and varied the input pulse duration in the picosecond regime, since the pulse duration was evaluated as an important parameter for material excitation. Specifically, material modifications induced by 50 fs pulses were uncleavable. In contrast, picosecond durations have been reported to enhance cleavability in stealth dicing.[12,36]

We processed 10 × 10 cm^2 soda-lime samples of thickness varying between 3 and 10 mm for 3 different pulse durations. Our procedure for stealth dicing is as follows. The samples were first laser-processed in a single pass. The onset of the Bessel beam was positioned at ~0.5 mm before the sample front surface. Then, the samples were mechanically stressed on a 3-line bending stage. The experiment was repeated 3 times for each set of parameters. Typical results are shown in Fig. 3. We show macro-photography images of the cleaved edges of the samples.

For the 2.2 ps pulse duration, the 3 and 5 mm thick samples are cleaved without observable chipping. Excellent results are observed to separate glass with thickness up to 10 mm, but for longer pulse durations of 4.2 ps and 6.2 ps. For the shortest pulse duration, chipping is observed for 6–10 mm mainly in the vicinity of the rear surface. The chipping area increases with glass thickness. We interpret this result as originating from the decrease in the local fluence in the central lobe of the Bessel beam for increasing the propagation distance. We note a slight increase in the quality of the results between 4.2 and 6.2 ps for the 8 mm case, where we report the absence of chipping on all our samples. For the 10 mm case, chipping extends over a distance of some 100 μm along the laser beam direction and the deviation from flatness is typically of the same order of magnitude. We note that this could be improved after investigating a wider set of parameters (position of the beam, pulse energy, pulse duration, etc.). We determined by optical profilometry that the RMS roughness of the cleaved samples for 6.2 ps pulse duration is quasi constant among the samples, with values in the range (1.00–1.25) μm. This is close to the roughness of ground glass (typ. 1.0 ± 0.2 μm). We finally note that the translation speed of 5 mm s^{-1} is relatively low in comparison with state-of-the-art stealth dicing, but we believe that high power lasers with high repetition rate will enable improving this parameter.

In conclusion, we have developed a compact Bessel beam shaper producing high energy pulses shaped with a 23° cone angle, over a propagation distance exceeding 8 mm in air. Experimental demonstration has involved energies up to 5 mJ, but we highlight that this Bessel beam shaper has no intermediate focus such that high average power and pulses with extremely high energies, in the range of several 100 mJ to Joules, could be shaped. Using such a beam shaper, we manage to upscale stealth dicing technique up to 10 mm thick glass. With 6 ps pulse duration, the surface roughness of the cleaved glass is similar to the one of ground glass. Therefore, we expect that this technique can

Published under license by AIP Publishing

Applied Physics Letters ARTICLE scitation.org/journal/apl

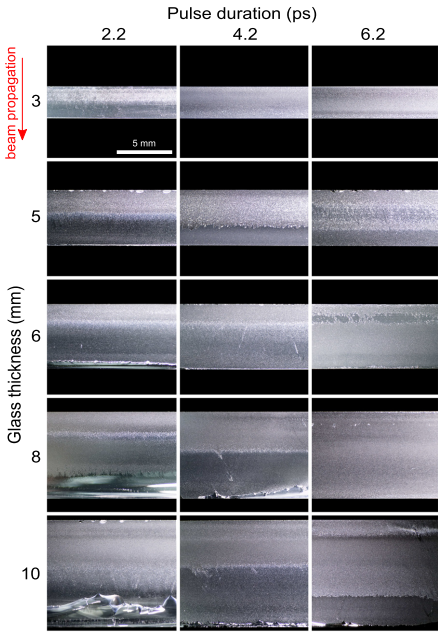

FIG. 3. Images of the cleaved edges of glass for thicknesses varying between 3 and 10 mm and for laser pulse durations of 2.2, 4.2, and 6.2 ps. Chipping occurs on the rear surface of the samples for shorter pulse durations and tends to disappear for the longer pulse durations.

save a lot of energy used at present to postprocess thick glass after mechanical cleaving. Therefore, we anticipate that our results will have an impact on applications of thick glass processing as well as on more fundamental research for laser plasma physics and high energy laser physics.

The research leading to these results received funding from the European Research Council (ERC) under the European Union's Horizon 2020 research and innovation program (Grant Agreement No. 682032-PULSAR), European Union 7th Framework Program under Grant Agreement No. 619177 (TiSaTD), Région Franche-Comté, and the EIPHI Graduate School (ANR-17-EURE-0002).

REFERENCES

[1]K. Mishchik, R. Beuton, O. D. Caulier, S. Skupin, B. Chimier, G. Duchateau, B. Chassagne, R. Kling, C. Hönninger, E. Mottay, and J. Lopez, Opt. Express **25**, 33271 (2017).
[2]J. Dudutis, R. Stonys, G. Račiukaitis, and P. Gečys, Procedia CIRP **74**, 333 (2018).
[3]L. Ye, W. Perrie, O. J. Allegre, Y. Jin, Z. Kuang, P. J. Scully, E. Fearon, D. Eckford, S. P. Edwardson, and G. Dearden, Laser Phys. **23**, 126004 (2013).
[4]M. Mikutis, T. Kudrius, G. Šlekys, D. Paipulas, and S. Juodkazis, Opt. Mater. Express **3**, 1862 (2013).
[5]M. K. Bhuyan, F. Courvoisier, P. A. Lacourt, M. Jacquot, R. Salut, L. Furfaro, and J. M. Dudley, Appl. Phys. Lett. **97**, 081102 (2010).
[6]L. Rapp, R. Meyer, R. Giust, L. Furfaro, M. Jacquot, P. A. Lacourt, J. M. Dudley, and F. Courvoisier, Sci. Rep. **6**, 34286 (2016).
[7]J. Durnin, J. Miceli, Jr., and J. H. Eberly, Phys. Rev. Lett. **58**, 1499 (1987).
[8]P. Polesana, M. Franco, A. Couairon, D. Faccio, and P. D. Trapani, Phys. Rev. A **77**, 043814 (2008).
[9]F. Courvoisier, R. Stoian, and A. Couairon, Opt. Laser Technol. **80**, 125 (2016).
[10]R. Stoian, M. K. Bhuyan, G. Zhang, G. Cheng, R. Meyer, and F. Courvoisier, Adv. Opt. Technol. **7**, 165 (2018).
[11]F. Ahmed, M. S. Ahsan, M. S. Lee, and M. B. G. Jun, Appl. Phys. A **114**, 1161 (2014).
[12]M. K. Bhuyan, O. Jedrkiewicz, V. Sabonis, M. Mikutis, S. Recchia, A. Aprea, M. Bollani, and P. D. Trapani, Appl. Phys. A **120**, 443 (2015).
[13]K. Mishchik, C. J. Leger, O. D. Caulier, S. Skupin, B. Chimier, C. Hönninger, R. Kling, G. Duchateau, and J. Lopez, J. Laser Micro/Nanoeng. **11**, 66 (2016).
[14]L. Rapp, R. Meyer, L. Furfaro, C. Billet, R. Giust, and F. Courvoisier, Opt. Express **25**, 9312 (2017).
[15]S. Klewitz, S. Sogomonian, M. Woerner, and S. Herminghaus, Opt. Commun. **154**, 186 (1998).
[16]A. Dubietis, P. Polesana, G. Valiulis, A. Stabinis, P. D. Trapani, and A. Piskarskas, Opt. Express **15**, 4168 (2007).
[17]M. Nesrallah, G. Vampa, G. Bart, P. B. Corkum, C. R. McDonald, and T. Brabec, Optica **5**, 271 (2018).
[18]L. V. Dao, K. B. Dinh, and P. Hannaford, Appl. Phys. Lett. **95**, 131114 (2009).
[19]B. Hafizi, E. Esarey, and P. Sprangle, Phys. Rev. E **55**, 3539 (1997).
[20]S. Kumar, A. Parola, P. D. Trapani, and O. Jedrkiewicz, Appl. Phys. B **123**, 185 (2017).
[21]I. Alexeev, K. Y. Kim, and H. M. Milchberg, Phys. Rev. Lett. **88**, 073901 (2002).
[22]M. Zamboni-Rached, K. Nóbrega, H. Hernández-Figueroa, and E. Recami, Opt. Commun. **226**, 15 (2003).
[23]M. Clerici, D. Faccio, A. Lotti, E. Rubino, O. Jedrkiewicz, J. Biegert, and P. D. Trapani, Opt. Express **16**, 19807 (2008).
[24]P. Bowlan, H. Valtna-Lukner, M. Lõhmus, P. Piksarv, P. Saari, and R. Trebino, Opt. Lett. **34**, 2276 (2009).
[25]L. Froehly, M. Jacquot, P. A. Lacourt, J. M. Dudley, and F. Courvoisier, J. Opt. Soc. Am. A **31**, 790 (2014).
[26]D. Turnbull, P. Franke, J. Katz, J. Palastro, I. Begishev, R. Boni, J. Bromage, A. Milder, J. Shaw, and D. Froula, Phys. Rev. Lett. **120**, 225001 (2018).
[27]M. K. Bhuyan, F. Courvoisier, P.-A. Lacourt, M. Jacquot, L. Furfaro, M. J. Withford, and J. M. Dudley, Opt. Express **18**, 566 (2010).
[28]S. Mitra, M. Chanal, R. Clady, A. Mouskeftaras, and D. Grojo, Appl. Opt. **54**, 7358 (2015).
[29]P. Polesana, A. Couairon, D. Faccio, A. Parola, M. A. Porras, A. Dubietis, A. Piskarskas, and P. D. Trapani, Phys. Rev. Lett. **99**, 223902 (2007).
[30]P. Boucher, J. D. Hoyo, C. Billet, O. Pinel, G. Labroille, and F. Courvoisier, Appl. Opt. **57**, 6725 (2018).
[31]V. Jarutis, R. Passkauskas, and A. Stabinis, Opt. Commun. **184**, 105 (2000).
[32]B. Chebbi, S. Minko, N. Al-Akwaa, and I. Golub, Opt. Commun. **283**, 1678 (2010).
[33]N. Weber, D. Spether, A. Seifert, and H. Zappe, J. Opt. Soc. Am. A **29**, 808 (2012).
[34]K. Bergner, M. Müller, R. Klas, J. Limpert, S. Nolte, and A. Tünnerman, Appl. Opt. **57**, 5941 (2018).
[35]R. Meyer, R. Giust, M. Jacquot, J. M. Dudley, and F. Courvoisier, Appl. Phys. Lett. **111**, 231108 (2017).
[36]M. Lamperti, V. Jukna, O. Jedrkiewicz, P. D. Trapani, R. Stoian, T. E. Itina, C. Xie, F. Courvoisier, and A. Couairon, APL Photonics **3**, 120805 (2018).

Published under license by AIP Publishing

C.4/ REVUE DES ACTIVITÉS DE L'ÉQUIPE POUR THE LASER USER.

ISSUE 84 SPRING 2017

TRANSPARENT MATERIALS

BEAM SHAPING AIDS TRANSPARENT MATERIALS PROCESSING

RÉMI MEYER ET AL.*

Two decades after the first laboratory demonstrations, ultrafast lasers used for micro and nano machining now offer the reliability and performance for mass production. In the particular field of transparent materials processing, a key capability of ultrashort pulses is that they can drill and modify matter from inside the material itself. Using appropriate beam shaping, it is possible to produce voids or nano-channels using a single pulse in even the hardest materials, and this has recently led to a major advance in the field of stealth dicing, a non-ablative technique used to cleave and separate transparent materials at extremely high processing speeds.

Transparent brittle materials such as glass or sapphire are ubiquitous in 21st century technologies: they are used for displays, watches, interposers for 3D microelectronics, or substrates for LED growth. Although these mass markets for fabrication require fast capabilities for drilling and cutting at high resolution, mechanical dicing or laser ablation only poorly address this need. For example, mechanical dicing is too slow and wastes material whilst laser ablation generates excessive deleterious debris. However, a new processing technology known as "stealth dicing" is currently showing great promise because rather than using ultrashort pulses for direct material ablation, the pulses are used to create an internal damage plane allowing high quality cleaving with small mechanical stress. And since the results have been demonstrated using only a single laser pass, processing speeds can reach meters per second.

Ultrashort laser pulses are ideally suited to process glass and sapphire from the inside because their infrared wavelength is well within the material transparency band and their ultra-high peak power allows material ionization (and therefore removal) only at the locations where it exceeds a threshold intensity (close to 1014 W/cm2). But the difficulty is to produce an elongated region of laser damage that extends longitudinally within the material being processed. In fact, two competing effects are at play during the propagation of a pulse in the transparent dielectric: the nonlinear Kerr effect which tends to lead to beam self-focusing; and plasma generation, which is necessary to deposit energy in the material, but which also acts to self-defocus the beam. Although these two effects can balance themselves in a soliton-like filament that propagates deep into the material, the nonlinearity of these processes makes it hard to predict, and to apply this technology in an industrial production environment.

High aspect ratio processing with single pulses shaped as Bessel beams

In our work, we have developed a new strategy where we avoid the complexity of spontaneous and uncontrolled nonlinear filamentation, and which allows us to deposit higher optical energy density inside the transparent material, creating controlled powerful micro-explosions. The technique is based on using zeroth-order Bessel beams which are a special class of laser beam which possess an intrinsic elongated structure as shown in Figure 1 (left). Bessel beams arise from cylindrically symmetric wave interference, which is in practice very simply formed by focusing a laser beam through an axicon (a conical lens) or by using an equivalent axicon phase mask placed in the beam path. Bessel beams have some remarkable properties that make them very attractive for machining applications. Firstly, the focal spot of the central region of the Bessel beam is extremely narrow (the diameter can even be smaller than the laser wavelength) and moreover, the focal spot propagates orders of magnitude (100's of m - mm) farther than the conventional Rayleigh range of Gaussian beams. Secondly, even in the nonlinear high-intensity regime where uncontrolled filamentation would occur with a Gaussian beam, Bessel beams do not experience this distortion, which is a key property when applying them for predictable and controlled processing applications.

Figure 1 (center, right) shows the result of single shot illumination of sapphire and glass with femtosecond pulses shaped into Bessel beams. Nano-voids can be generated completely inside sapphire [1]: this is possible because the powerful microscopic explosion pushes matter to the sides of the channel with extremely high and localized pressure even though sapphire is one of the hardest materials. The same approach allows for through-nanochannel drilling with aspect ratios exceeding 100:1 [2]. With appropriate temporal pulse sequences, an even greater control on the processes is possible [3].

High-precision stealth dicing after single pass illumination

The use of Bessel beams is especially attractive for stealth dicing, because it allows us to process an array of such channels a few microns

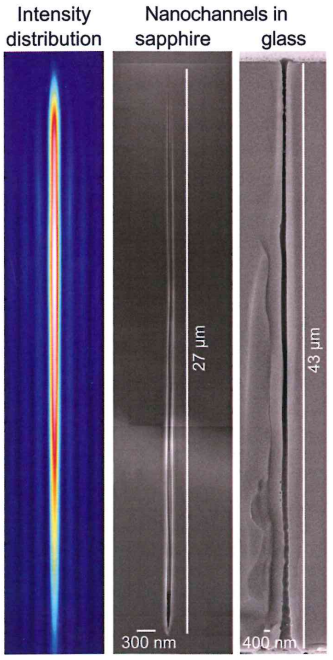

Figure 1: Bessel beam intensity distribution and corresponding nanochannels processed in sapphire and glass using single shot illumination with ultrashort lasers, observed with a Scanning Electron Microscope (SEM)

apart to define a cleavage plane along a line, and we can do this with extremely high speed. This process then defines a weakened plane in the material which yields mechanical cleavage under small bending as shown in Figure 2. With industrial lasers operating at repetition rates of several hundreds of kilohertz, the nano-drilling step can reach speeds on the order of meters per second. Importantly, the width of the illuminated path, called "street" in wafer dicing technologies, is below 2 microns, saving a great deal of material waste when compared with scribing techniques.

Cleaving crystalline materials

In crystals, we can also push the process farther by taking benefit of the ability of crystalline planes to guide fractures. At higher energy in the femtosecond pulse illumination regime, we have demonstrated that a linear crack can be

ISSUE 84 SPRING 2017

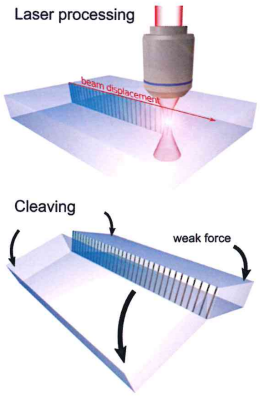

Figure 2: Concept of stealth dicing with non-diffractive beams. Transparent material is processed using Bessel beams to weaken the targeted fracture plane and in a second step cleaving occurs under a small bending

generated which follows one of the crystalline axes of the material [4]. Moreover, we were able to arbitrarily choose the direction of the cleavage plane among the crystalline axes by varying the polarization of the input laser beam. The important result is that the distance between laser impacts can be increased to several tens of micrometers, thus increasing by a factor 10 the potential writing speed. Figure 3 shows a triangular cut out of sapphire produced with this technique.

What about the future?

It is known that brittle materials need edge polishing to avoid chipping when they are packaged or handled. However, such polishing is energetically costly and delicate. But this is where novel beam shaping techniques suggest a further novel application of ultrafast lasers using "accelerating beams" that curve while they propagate. Although individual rays of light always propagate in a straight line, we can shape a laser beam so that a narrow high intensity region (above the threshold for ablation) can follow an arbitrary curved path known as an optical caustic as shown in Figure 4 [5]. The novel capability of this approach has been shown in demonstrations where we have used accelerating beams to polish the edges of silicon and diamond wafers, as shown in Figure 5 [6].

Conclusion

The application of ultrashort pulsed lasers is undergoing rapid expansion in the field of transparent laser materials processing because of the novel capabilities offered by beam shaping to precisely control how energy is deposited within the material's bulk. State of the art technologies allow us to mark, generate open voids, create high aspect ratio nanochannels, cleave, and create self-cleavage planes all along material depth. This opens a wealth of novel opportunities to process materials, reduce costly material waste during separation, minimize debris, and to develop processes that are more efficient. This is probably not the end of the story. Our group and others are currently working on improving beam shapes to increase the ability of materials to cleave while reducing the amount of micro-cracks left behind after cleaving. While the beams that are used in these processes are very small, the opportunities of these new technologies appear to be as large as we can imagine.

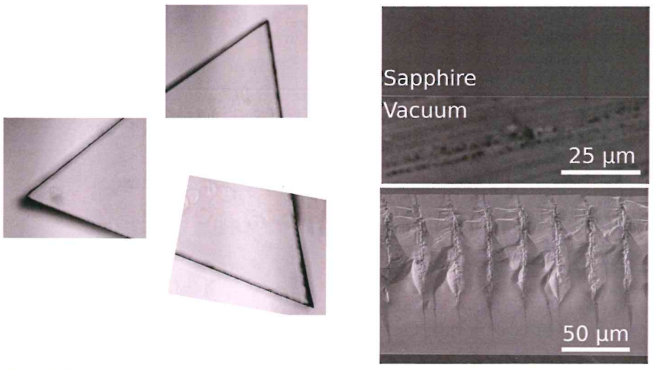

Figure 3: Sapphire sample cleaved in a triangle shape after ultrashort Bessel beam processing. Right SEM pictures show the cleaved edges aspect respectively from top and side views

Acknowledgement

The research leading to these results has received funding from the European Union Seventh Framework Programme [ICT 2013.3.2 Photonics] under grant agreement n°619177 and European Research Council (ERC) under the European Union's Horizon 2020 research and innovation programme (grant agreement No 682032-PULSAR). This work has been performed in cooperation with the Labex ACTION program, contract ANR-11-LABX-0001-01 and partly supported by the French RENATECH network.

References

[1] L. Rapp et al., Scientific Reports, 6, 34286, 2016
[2] M. K. Bhuyan et al., Applied Physics Letters, 97, 081102, 2010
[3] F. Courvoisier et al, patent WO 2013/153195, EP 2 836 332 B1
[4] L. Rapp et al., Optics Express, 25 (8) 9312-9317, 2017
[5] A. Mathis et al., Optics Express, 38 (13) 2218-2220, 2013
[6] A. Mathis et al., Applied Physics Letters, 101, 071110, 2012

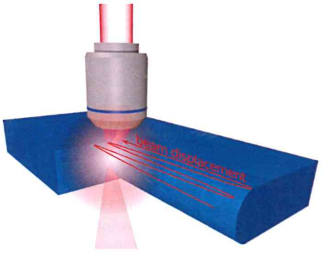

Figure 4: Concept of material processing using accelerating beams. Multiple passes are required for curved edge polishing.

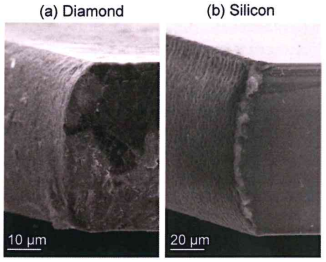

Figure 5: Examples of brittle materials curved polishing: SEM pictures of diamond and silicon processed with accelerating beams.

*** Rémi Meyer, John Dudley & François Courvoisier, Institut FEMTO-ST, France**

Contact: François Courvoisier
francois.courvoisier@femto-st.fr
www.femto-st.fr

Rémi Meyer is a PhD student at University of Franche-Comté, France. His main research interest is ultrafast laser-matter interaction with shaped beams

SEE OBSERVATIONS P33

TABLE DES FIGURES

1.1 Comparaison d'usinages dans l'acier par un laser à 780 nm, dont la durée d'impulsion varie entre (a) 3,3 ns, (b) 80 ps et (c) 200 fs (10^4 impulsions dans chaque cas). Le cas femtoseconde montre l'absence de matière fondue et une zone affectée restreinte par rapport aux deux autres cas. Image tirée de [20]. 8

1.2 Illustration des échelles de temps typiques mises en jeu pour l'ablation laser femtoseconde. La zone rouge représente l'échelle de temps liée au laser d'excitation (dans cette thèse, $\tau_p \approx 10^{-13}$ s). Schéma tiré et traduit de [1]. 9

1.3 Différents phénomènes d'interaction collisionnelle impliquant photon-phonon-électron, se produisant dans/entre les bandes de valence et de conduction. Image tirée de [28]. 10

1.4 Courbes d'iso-intensité pour un faisceau gaussien entrant en régime de filamentation et image au microscope optique de la zone modifiée dans la silice fondue, correspondant à ce profil d'intensité. Figure tirée de [7]. . . . 11

1.5 Génération d'un faisceau de Bessel J_0 d'angle conique θ à partir d'un faisceau gaussien via un axicon d'angle γ. Le profil d'intensité axial I_{axial} suit la loi donnée par l'équation 1.3 et le profil d'intensité transverse une loi en $|J_0(r)|^2$. 12

1.6 Images en microscopie électronique de nanocanaux à haut facteur de forme, générés chacun par une impulsion unique mise en forme de faisceau de Bessel à haut angle (17° dans la silice fondue). Image tirée de [13]. 14

1.7 Application des faisceaux de Bessel au clivage du verre : l'induction d'une succession de nanocanaux permet la fragilisation d'un plan sur l'ensemble de l'épaisseur du matériau, permettant de faire propager une fracture dans ce plan et d'obtenir ainsi une découpe haute vitesse. 14

1.8 Vue en coupe d'un SLM en réflexion. Chaque pixel possède une électrode permettant de faire tourner localement les cristaux liquides. Schéma tiré de [76]. 15

1.9 Exemples de mise en forme spatiale complexe : a) profil d'intensité cible, b) masque correspondant affiché sur le SLM, c) ablation de surface réalisée en un tir laser unique à l'aide du masque (b), d) exemple d'application où chaque lettre est inscrite sur le milieu par un seul tir laser. Figure tirée de [85]. 16

1.10 Allure de l'intensité dans l'espace de Fourier lors de la génération de faisceaux de Bessel par un SLM. Les ordres de diffraction forment une collection d'anneaux, qu'on sépare par l'ajout au masque de phase conique (a) de rampes de phases linéaires (b-d). Les masques affichés sur le SLM sont donnés pour chaque cas. 17

1.11 Vue schématique du dispositif de mise en forme spatiale, utilisant un SLM et deux lentilles pour la génération d'un faisceau de Bessel à haut angle. L'ordre 1 est placé sur l'axe optique par rotation physique du SLM. Image tirée de [100]. 18

1.12 Exemple de faisceau de Bessel rendu chromatique (dispersion angulaire) par l'ajout d'une rampe linéaire au masque de phase conique sur le SLM. Image tirée de [100]. 19

1.13 Démonstration de l'effet du profil longitudinal d'intensité sur la propagation non-linéaire, avec trois profils cibles (a) : 1- faisceau de Bessel-Gauss ; 2- Bessel à plateau en z, croissance linéaire ; 3- Bessel à plateau en z, croissance parabolique. La propagation non-linéaire simulée (b) montre une grande instabilité avec les profils 1 et 2, tandis que le profil 3 réduit l'influence des effets non-linéaires. Issu de [102]. 19

1.14 Comparaison entre mesures expérimentales (a-b) et modèles numériques par résolution de l'équation de Schrödinger non-linéaire (c-d). En régime linéaire (a) comme non-linéaire (b) dans la silice fondue, le profil de fluence mesurée expérimentalement plan à plan suit un profil identique. Cependant le modèle intégrant la solution numérique ne permet de retrouver une situation comparable qu'en réduisant le temps de collision électronique moyen à 15 attosecondes (d), au lieu de 1 fs (c). Illustration tirée de [15]. 21

1.15 16 images issues de l'expérience de Muybridge, montrant la décomposition de galop d'un cheval lors d'un passage unique du cheval devant les appareils. Les appareils sont déclenchés par des fils tendus sur le chemin du cheval [139]. 24

1.16 Imagerie par stroboscopie par H. E. Edgerton d'une goutte de lait s'écrasant sur une plaque en 1935 (flash : 1 ms) [140] et d'une balle de fusil traversant une plaque de plexiglass en 1962 (flash : 12 µs) 25

1.17 Reconstruction de la dynamique par une stroboscopie en 4 images (exposition : 1 µs) : pour réaliser la séquence, 4 ampoules et 4 balles ont été nécessaires. Le délai entre le tir de fusil et le déclenchement du flash a été incrémenté de 750 µs entre chaque image. [141] 26

1.18 Montage expérimental d'imagerie pompe-sonde en observation par le côté, les axes optiques pompe et sonde étant perpendiculaires. Schéma tiré de [127]. 27

1.19 Montage expérimental d'imagerie pompe-sonde colinéaire, partageant les mêmes optiques de focalisation de collection. Schéma tiré de [156]. 28

1.20 Ombrogrammes présentant 3 ondes de choc (1,2,3) se propageant depuis un filament (ligne sombre) induit par un faisceau gaussien à 40 J/cm^2 (50 fs), vu depuis le côté. En haut à droite figure le délai correspondant aux deux images. Figure tirée de [127]. 29

1.21 (a) Montage interférométrique permettant la formation d'un hologramme (b) en imagerie pompe-sonde, autorisant la reconstruction de la phase (c) puis de l'indice de réfraction à une (e) et deux dimensions (d) pour différents délais pompe-sonde. Figure tirée de [154]. 29

1.22 De gauche à droite : montage expérimental de Hayasaki *et al.* et profils d'absorption reconstituée, à 800 et 400 nm. Figure tirée de [153]. 30

1.23 De gauche à droite : montage expérimental de Mao *et al.*, et profils d'absorption transitoire dans la silice fondue (SiO_2) et la magnésie (MgO). Figure tirée de [31]. 30

1.24 Évolution de l'indice de réfraction local, mesuré par microscopie à contraste de phase lors d'une ablation par faisceau de Bessel. Figure tirée de [120]. 32

1.25 Montage expérimental utilisé pour ce premier axe de travail (chapitres 2 et 3). La pompe est mise en forme par un SLM allié à un télescope de fort grandissement, la sonde est obtenue par une réplique de l'impulsion pompe, doublée en fréquence (SHG). Des lignes à retard contrôlent le délai pompe-sonde et le délai entre sondes interférométriques. 34

2.1 Image au microscope électronique, montrant une section d'échantillon dans laquelle on a inscrit une matrice de nanocanaux par faisceaux de Bessel. On notera la grande similarité d'un canal à l'autre. Image tirée de [13]. 36

2.2 Illustration de l'ajout d'un délai variable entre les impulsions pompe et sonde par déplacement d'une paire de miroirs. 37

2.3 Précompensation de la dispersion induite par un objectif de microscope grâce à un compresseur à prisme. 38

2.4 Principe de la mesure de synchronisation à base d'un réseau d'indice transitoire induit. L'impulsion pompe mise en forme spatialement génère par effet Kerr un réseau d'indice transitoire dans le milieu. Pour des délais proches de $\tau = 0$, l'impulsion sonde diffracte sur le réseau d'indice transitoire. La mesure porte sur l'intensité du signal diffracté $I(\tau)$. 42

2.5 Schéma de l'expérience de génération d'un réseau transitoire d'indice par effet Kerr. a) Schéma bloc du montage expérimental. b) Zoom sur l'aire pointillée en (a), illustrant la zone d'interaction pompe-sonde et sur le système d'imagerie dans l'espace de Fourier. c) Vue au niveau de l'échantillon, dans lequel le réseau d'indice (en rouge) fait diffracter le faisceau sonde (bleu). Λ représente le pas du réseau d'indice, ℓ sa longueur, α son inclinaison par rapport à l'axe optique et θ le demi-angle de croisement des faisceaux pompe. 46

2.6 Profils longitudinaux des faisceaux pompe (a-b) et sonde (c) pour $\theta = 20°$ et $\alpha = 10$ °. La comparaison des profils numérique (a) et expérimental (b), montre la très bonne correspondance et la possibilité de modéliser fidèlement le profil d'intensité, et *in extenso* le profil d'indice transitoire attendu. 47

2.7 À gauche : portion de l'image collectée sur la caméra lors de la mesure du signal diffracté, lorsque τ = 0 et en absence de filtres (image saturée pour l'illustration). En vert, la zone sur laquelle on intègre le signal mesuré, permettant de remonter à $\Sigma_{exp}(\tau)$. À droite : schéma d'identification des différentes contributions, ainsi que l'axe des angles selon l'axe vertical de la caméra x, mettant en évidence la diffraction à l'angle de Bragg : $\theta_x(\Sigma) = 2\alpha = \theta$. 50

2.8 Évolution du signal diffracté pour différentes énergies de pompe, dans le verre (Schott D263). En insert, les courbes $\Sigma(\tau)$ pour des énergies de 50 à 500 nJ. L'amplitude de Σ suit un profil quadratique en E_p^2, caractéristique de l'effet Kerr à l'origine du couplage avec l'impulsion sonde. 51

2.9 Influence de la polarisation des deux impulsions sur l'efficacité de diffraction, pour un réseau selon l'axe y dans le saphir. Pour chaque ligne, la polarisation pompe est conservée fixe, et nous faisons tourner la polarisation sonde. En pointillé est rappelée la courbe du premier graphe de la ligne ($\Sigma_{mm}, m = x, y$). L'ensemble des graphes est normalisé de manière uniforme. La dernière colonne représente le signal de la colonne centrale après multiplication par un facteur 6. 52

2.10 Mesure des signaux diffractés en configuration de polarisation colinéaire Σ_{xx} et perpendiculaire Σ_{xy}, pour différents angles de croisement θ des ondes pompe (θ donné dans l'air). Le signal diffracté est normalisé par Σ_{xy} afin de comparer directement les ratios $\Sigma_\perp/\Sigma_\parallel$. La ligne pointillée et la plage grisée présentent le ratio moyen et sa barre d'erreur. 53

2.11 Étude de la synchronisation pompe-sonde pour différentes positions en profondeur du réseau d'indice dans un échantillon de saphir. À gauche, les courbes $\Sigma(\tau)$ pour 5 positions de l'échantillon différentes. À droite, l'évolution de $\tau = 0$ pour chaque position, comparée avec la droite théorique $\Delta\tau(\delta)$ donnée en équation (2.14). 55

2.12 Mise en évidence d'un décalage de $\approx$130 fs sur le délai τ = 0 pour deux états de polarisation de la pompe, pour un réseau induit dans la silice fondue. Ni l'orientation du réseau ni l'état de polarisation de la sonde n'influent sur ce décalage. 56

2.13 L'ajout d'un compresseur permet d'améliorer considérablement la résolution de l'expérience pompe-sonde : la courbe d'intercorrélation voit sa largeur diminuée d'un facteur 5 grâce à la compression de l'impulsion sonde. 57

2.14 Signal diffracté pour différentes distances d'insertions des prismes dans le compresseur. L'optimum obtenu possède une largeur à mi-hauteur de 133 fs. On choisit arbitrairement cette position des prismes comme référence d_p = 0 mm. 58

2.15 Intercorrelation numérique sur la base de deux gaussiennes, représentant les impulsions pompe et sonde. Supposant le profil de $I_p(t)$ on retrouve le profil $I_s(t)$ conduisant à $\Sigma(\tau)$ le plus proche de celui mesurée expérimentalement $\Sigma_{exp}(\tau)$. 58

2.16 Signal diffracté mesuré par la caméra pour différents délais, au niveau de la région d'intérêt (ROI). Le spot se déplace selon l'axe y en fonction du délai lorsque l'alignement du compresseur à prismes n'est pas optimal. La ligne pointillée verte correspond à la ligne sur laquelle on extraira le profil d'intensité par la suite. 59

2.17 Effets spatiotemporels induits par la dispersion dans différentes configuration : a) lame à face parallèle en incidence normale (dispersion temporelle), b) idem en incidence oblique (chirp spatial), c) cas d'un prisme (dispersion angulaire et pulse front tilt) et d) de deux prismes parallèles (chirp spatial et pulse front tilt). 60

2.18 Illustration du déplacement du spot diffracté sur la caméra pour un faisceau sonde présentant un pulse front tilt associé à un chirp angulaire. 61

2.19 Évolution du profil d'intensité selon la ligne pointillée montrée en figure 2.16 en fonction du délai et pour différents angles de désalignement des prismes (en gras). Le déplacement du spot sur l'axe y est converti en angle au niveau de l'échantillon. Le signal correspondant à un compresseur correctement aligné (désalignement : 0 mrad) est encadré en vert. 61

3.1 Comparaison entre la méthode d'imagerie théorique (inaccessible) et celle utilisée en pratique. La première utilisant une imagerie dans le volume ne permet pas de retrouver fidèlement le champ sonde dans le plan d'imagerie ; la seconde utilise une imagerie en face de sortie, par déplacement conjoint de l'échantillon et de l'objectif entre deux images. 69

3.2 Étapes principales de l'algorithme de démodulation permettant à partir d'un couple d'images I_{REF}/I_{DATA} de retrouver une mesure de $\mathcal{E}$. Les images dans l'espace des fréquences (étapes 2, 3 et 6) sont présentées en échelle logarithmique pour visualiser l'ensemble des contributions et les effets de filtrage. 73

3.3 Interféromètre de Mach-Zehnder dédié à l'holographie du plasma excité par une onde pompe (en rouge) dans un échantillon. Un premier télescope ($M = \times$ 1/278) réduit le faisceau sonde à un diamètre de 20 µm au niveau de l'échantillon, tandis que le second permet d'imager sur la caméra le faisceau transmis avec un grandissement $M' = \times$ 208. La caméra pompe sert à l'imagerie du faisceau de Bessel lors de la préparation de l'expérience. . 77

3.4 Même situation qu'en figure 3.3, mais avec compensation de dispersion cette fois : les lentilles et objectifs de microscope sont répliqués sur le faisceau de référence, avec les mêmes relations de confocalité. L'ensemble du bloc cerné de pointillés est déplacé uniformément lors de la translation du système d'imagerie. 78

3.5 Coupes transverses (x, y) et longitudinales (x, z) du faisceau de Bessel expérimental dans l'air (échelles normalisées). Le profil le long de l'axe z est présenté en rouge sur la section longitudinale et montre la constance de l'intensité sur 30 µm. La ligne pointillée indique le plan dans lequel est extraite la section transverse. 78

3.6 Étude de stabilité par imagerie d'un faisceau de Bessel sur le trajet optique pompe : tracé des positions selon les axes x et y du barycentre G du lobe central. L'amplitude de déviation est inférieure à un pixel (22 nm/pixel). . . 80

3.7 Dynamique sub-picoseconde de l'indice de réfraction (réel et imaginaire) en fonction du délai τ dans trois matériaux (E_p = 1 µJ, τ_p = 110 fs, θ = 26°, polarisations pompe et sonde selon l'axe x). Autour de τ = [-200, 200] fs, la contribution de l'effet Kerr est visible ; au delà de 200 fs, la contribution liée à l'ablation (plasma) devient dominante dans tous les cas. Une section dans le plan (x, y) est extraite à τ = 400 fs (ligne pointillée). On notera que les échelles sur l'indice sont différentes d'un milieu à l'autre, et centrées autour de n_0 pour les cartographies $\mathrm{Re}(n)$. 84

3.8 Comparaison de la dynamique pour des délais inférieurs à 2 ns, dans 3 milieux différents et pour une même excitation : E_p = 1 µJ, τ_p = 110 fs, θ = 26°. Une section selon l'axe horizontal y est montrée en fonction du délai τ et une section dans le plan (x, y) est présentée à gauche à τ = 1 ns (correspondant à la ligne en pointillé). 88

3.9 Mise en évidence d'une onde mécanique dans le saphir, par modification du contraste de visualisation. Le front de l'onde est cerné de lignes pointillées pour plus de lisibilité. Cette onde se propage à plus grande vitesse que celles dans la silice fondue ou le borosilicate. 89

3.10 Définitions des différents diamètres $Ø_{def1,2,3}$, pris sur les cartographies d'indice à τ = 400 fs. 91

3.11 Principe de l'expérience de réflexion sur le plasma : nous mesurons le spectre spatial du faisceau de Bessel après propagation sur le plasma induit, pour un spectre incident dont la symétrie cylindrique a été brisée (forme en "C"). 94

3.12 Exemple de décomposition de l'anneau dans l'espace de Fourier sur la base des fonctions de Bessel d'ordre 0 à ±10. On remarque que l'ordre 0 prime, comme on peut le voir après transformée de Fourier : le faisceau formé possède globalement l'allure d'un faisceau de Bessel J_0 et conduit donc probablement à la formation d'un plasma localisé dans le lobe central. 95

3.13 Principe du calcul de réflexion/transmission sur une collection d'ordres de Bessel, avec résolution des équations de Maxwell pour chaque ordre pris individuellement. Le faisceau émergeant est obtenu par sommation sur l'ensemble des ordres transmis. 95

3.14 Approximation d'un profil de densité linéaire par une série finie de couches, possédant chacune une permittivité moyennée sur l'épaisseur de chaque couche. 96

3.15 Comparaison du modèle simulé, tronqué sur la base des fonctions de Bessel d'ordre 0 à ±10, avec le cas expérimental pour un couple de paramètres $(Ø_{plasma}, \rho_{plasma})$ donné. 96

3.16 Comparaison des spectres spatiaux émergents simulés avec le spectre expérimental, supposant trois diamètres du plasma à la base (approximation d'une rampe linéaire de densité) et différentes densités maximum. Les graphes cernés de vert donnent une correspondance satisfaisante à la figure expérimentale observée. 98

3.17 Identification des différentes contributions mesurées par la caméra lors de la mesure du signal de seconde harmonique. L'ombre horizontale visible à gauche du point central correspond aux précédents dommages induits. . . 99

3.18 Comparaison des angles coniques d'excitation à 800 nm (en haut) et d'émission à 400 nm (en bas), pour différents angles coniques du faisceau de Bessel θ_ω. Le milieu d'interaction est la silice fondue. Le rapport entre $\theta = \theta_\omega$ et $\theta_{SHG} = \theta_{2\omega}$ est donné pour information (θ donné dans le milieu). 100

3.19 Spectre d'émission de la SHG pour différents délais τ_{1-2} dans la silice fondue. Le délai est donné tel que $\tau_{1-2} > 0$ lorsque l'impulsion 2 arrive après l'impulsion 1. La trace sombre horizontale correspond à l'ombre des précédents tirs. Paramètres : $E_{p,1}$ = 1 µJ, $E_{p,2}$ = 0,5 µJ, θ_1 = 10° et θ_2 = 17° (dans le milieu). 101

3.20 Spectre d'émission de la SHG pour différents délais τ_{1-2} dans la silice fondue. Paramètres : $E_{p,1}$ = 2 µJ, $E_{p,2}$ = 1 µJ, θ_1 = 10° et θ_2 = 17° (dans le milieu). 102

3.21 Principe du clivage laser : 1) l'exposition au laser fragilise un plan dans le milieu à découper, 2) une force extérieure est ensuite appliquée, conduisant à une fracture guidée par le plan fragilisé. 108

3.22 a) Vue schématique d'une découpe de verre fin au laser ; b) Verre de protection d'un smartphone, 300 µm d'épaisseur ; c) Panneaux solaires, dont la vitre de protection possède une épaisseur de 3 à 4 mm. (b et c, images *Creative Commons*). 110

4.1 Images au microscope électronique à balayage de deux échantillons clivés par faisceaux de Bessel (énergie : 12 µJ). La ligne pointillée montre l'emplacement du plan de clivage souhaité (plan d'usinage). Dans les deux cas, le clivage est imparfait car hors-plan. 114

4.2 Schéma du montage expérimental utilisé pour la génération de nanocanaux elliptiques. L'ensemble est identique à un montage conventionnel d'usinage par faisceaux de Bessel, à la différence du filtrage spatial réalisé dans le plan de Fourier du premier télescope. 116

4.3 Dans le plan de Fourier de la première lentille, le faisceau de Bessel généré par l'axicon prend la forme d'un anneau (en rouge). Le filtre spatial utilisé élimine toutes les fréquences $|k_x| < 0.5$ µm^{-1} (en hachuré). De ce filtre n'émergent que deux lobes, formant par la suite un faisceau de Bessel modifié (après une transformée de Fourier par l'objectif de microscope). . . 116

4.4 Sections transverses (a-b) et longitudinales (c-f) de faisceau de Bessel modifiés par filtrage spatial. On compare ici les profils de faisceau simulés (a,c-d) et expérimentaux (b,e-f), montrant un très bonne correspondance, à quelques inhomogénéités près (dues aux imperfections de l'axicon [265]). 117

4.5 Images au microscope électronique à balayage des nanocanaux elliptiques obtenus par des impulsions uniques dont la durée est de 2,3 ps. (a) et (b) vues de la face inférieure de l'échantillon, après usinage à des énergies respectives de 12 et 18 µJ. (c) Preuve de l'existence de nanocanaux par creusement au faisceau d'ion focalisé d'une poche dans l'échantillon, affleurant les 3 nanocanaux elliptiques obtenus à 18 µJ. . . . 118

4.6 Banc de test à 3 points : vues schématique (a) et réelles (b-c). La platine de translation associée aux lames de rasoir assure la flexion de l'échantillon et mesure la déflexion nécessaire à la fracture. (d) Principe de la flexion pour mesurer la ténacité de séparation, (e) pour la mesure de la ténacité des bords après clivage. La zone rouge représente le plan usiné au laser. . 120

4.7 Distinction des comportements de fracture après usinage de l'échantillon : une séparation guidée et en deux pièces seulement est considérée comme un clivage ; tous les autres cas de fracture non-guidée ou en plusieurs morceaux sont classés comme des cassures. 120

4.8 Utilisation de trois situations d'usinage différentes : le déplacement relatif de l'échantillon par rapport au faisceau permet d'exploiter les différents axes de symétrie du faisceau. Pour le faisceau de Bessel (FB) cette direction est prise arbitrairement, et pour le faisceau de Bessel elliptique (FBE) les deux directions de déplacement correspondent aux grand ($FBE_{//}$) et petit axes de l'ellipse ($FBE_{\perp}$). 121

4.9 Valeurs de déflexion mesurées lors du clivage après usinage par trois formes de faisceau et trois énergies différentes. Les cas de clivage sont montrés par un disque vert et les cas de cassure par une étoile rouge. En noir figurent la valeur moyenne (cercle) et la barre d'erreur associée. . . . 122

4.10 Graphes de Weibull, reprenant les données présentées en figure 4.9 pour les cas du faisceau de Bessel (FB) et du faisceau de Bessel elliptique (FBE), à 12 et 18 µJ. 123

4.11 Comparaison des résultats de ténacité transverse pour les cas circulaire et elliptique, à 12 et 18 µJ, sous forme de 4 populations (a) et d'un graphe de Weibull (b). Le cas elliptique présente une déflexion systématiquement plus haute ($\beta \geq 0{,}70$ mm) que pour le cas circulaire ($\beta \leq 0{,}60$ mm). 124

4.12 Profils des bords clivés pour des faisceaux de Bessel (E_p = 12 µJ) à géométrie cylindrique (a-c) et elliptique (d-f). On s'intéresse à la position de la fracture par rapport au plan des faisceau (a,d), à l'allure globale (b,e) et à la rugosité du bord clivé (c,f). 126

4.13 Principe de la simulation à éléments finis utilisée : partant du modèle réel de flexion (a), on définit un modèle simplifié (b) permettant un calcul de contrainte au niveau d'un nanocanal. On observe la face arrière, où la contrainte maximal est attendue. Le modèle donne des résultats équivalents avec et sans l'hypothèse de symétrie (c). 127

4.14 Simulations par éléments finis des contraintes σ selon l'axe x à la face inférieure d'une plaque mince soumise à une flexion en z et dont le centre est percé. On compare le cas d'un alésage cylindrique (a) puis elliptique de ratio 2 :1(b). Une moitié seulement de la plaque mince est montrée et l'échelle correspond aux dimensions d'un nanocanal dans le modèle réduit (échelle 1/1000). 128

4.15 Simulations par éléments finis pour différentes distances intercanaux : S = 1,7 µm, $S/2$ et $2S$. 129

5.1 Illustration d'un arrangement télescopique permettant à partir d'un faisceau de Bessel primaire de bas angle de générer un faisceau de Bessel à haut angle atteignant des intensités permettant l'ablation. Les intensités typiques mises en jeu dans le montage optique sont indiquées pour le cas d'un angle conique du faisceau Bessel secondaire de 26° pour des impulsions de 1 ps et 10-100 µJ. 134

5.2 Formation d'un faisceau de Bessel par un filtrage en anneau dans le plan de Fourier d'une lentille. La longueur du faisceau de Bessel L_B varie avec l'inverse de l'épaisseur de l'anneau e_B. 135

5.3 Groupe arrière d'un objectif de microscope × 20 endommagé : une portion d'anneau est gravée à la surface de la première lentille du groupe (demi-cercle noir) et rend l'objectif inutilisable. 136

5.4 Montage proposé par Chebbi *et al.* [292] et appliqué par Bergner *et al.* à l'usinage du verre de grande épaisseur [157]. Image tirée de [292]. 137

5.5 Schéma de principe du montage à 3 axicons. Les deux premiers axicons d'angle $\pm\alpha$ = 10°, séparés de la distance d, génèrent un anneau qui est ensuite focalisé par le troisième axicon d'angle β = 45°. Le faisceau de Bessel de longueur L_B se forme après une distance d_w et possède un angle θ_f. 138

5.6 Photographie du montage à 3 axicons. Le faisceau laser est mis en évidence par diffusion durant une exposition longue. Le faisceau de Bessel se forme à la droite de l'image. 140

5.7 Effets d'une pointe arrondie sur un axicon : une dispersion angulaire est observée pour les rayons passant à proximité du centre de l'axicon (zone grise). L'épaisseur de l'axicon réel ne varie pas selon profil théorique en $|r|$ et les projections de k, k_r et k_z sont donc pas des constantes de r. La solution consiste à placer un filtre spatial dans le système, pour éliminer les rayons dispersés angulairement qui conduisent à une focalisation interne au 3^e axicon (en traits pointillés). 141

5.8 Vue schématique du montage réalisé pour caractériser le faisceau en régimes linéaire et non-linéaire. La ligne pointillée représente le plan d'imagerie, qu'on déplace grâce à une platine de translation portant l'ensemble du système d'imagerie. 143

5.9 Profils d'intensité du faisceau de Bessel généré par le système à 3 axicons, tracés en échelle logarithmique pour 6 énergies différentes entre 12 µJ et 1 mJ. Les sections transverse XY sont prises au niveau de la ligne pointillée blanche tracée sur les profils longitudinaux, dans le plan où l'intensité est maximale. 144

5.10 Formation d'un plasma luminescent de 8 mm de longueur dans l'air à E_p = 2,5 mJ et pour des impulsions de 43 fs à l'entrée du système. 145

5.11 Photographie de nanocanaux dans une lame de verre de 1 cm, vue par la tranche. La modification induite s'étend quasiment sur l'ensemble de l'épaisseur de l'échantillon, sans pour autant croiser la face de sortie. Dans ce cas le positionnement de l'échantillon n'est pas optimal. 147

5.12 Macrophotographies de bords d'échantillons clivés par faisceau de Bessel (simple passe), pour 3 durées d'impulsions en régime picoseconde et pour différentes épaisseurs de verre. 148

5.13 Macrophotographie d'un bord d'échantillon de 10 mm clivés par faisceau de Bessel (simple passe, τ_p = 2,2 ps) et sa cartographie de fracture. On identifie deux types de fractures : un clivage sur deux tiers de sa surface (contour vert) et une cassure en plusieurs éclats (contour rouge) majoritairement vers la face inférieure de l'échantillon. 149

5.14 Profils d'élévation pour trois surfaces de verre différentes : après clivage de lames de 3 et 10 mm (durée d'impulsion : 6,2 ps) ; après rodage industriel. La valeur RMS correspond à la rugosité quadratique moyenne sur la surface observée. 149

5.15 Découpes de carrés par clivage : a) Schéma du parcours relatif du laser sur l'échantillon. b) et c) Carrés clivés dans des échantillons de respectivement 3 mm et 10 mm, comparés à la taille d'une pièce de 1 euro. Le carré de 3 mm d'épaisseur ne présente aucune imperfection, tandis que le carré de 10 mm possède quelques éclats. 151

A.1 Étapes de la méthode d'observation des nanocanaux par la tranche, à l'aide d'une combinaison FIB/MEB. 160

B.1 Schéma de principe du montage à 3 axicons. Les deux premiers axicons possèdent un angle $\pm\alpha$ et le troisième un angle β. Le faisceau de Bessel de longueur L_B se forme après une distance d_w et possède un angle θ_f. . . 163

BIBLIOGRAPHIE

[1] GATTASS, R. R., AND MAZUR, E. **Femtosecond laser micromachining in transparent materials**. *Nature Photonics 2*, 4 (2008), 219–225.

[2] KELDYSH, L. V. **Ionization in the field of a strong electromagnetic wave**. *Sov. Phys. JETP 20*, 5 (1965), 1307–1314.

[3] GRUZDEV, V. **Fundamental mechanisms of laser damage of dielectric crystals by ultrashort pulse: ionization dynamics for the Keldysh model**. *Optical Engineering 53*, 122515 (2014).

[4] ALEXANDROV, V. V., KOVALSKY, N. G., PERGAMENT, M. I., AND RUBENCHIK, A. M. **On absorption of the laser radiation in a plasma with subcritical density**. *Laser and Particle Beams 2*, 2 (1984), 213–221.

[5] FEDOSEJEVS, R., OTTMANN, R., SIGEL, R., KÜHNLE, G., SZATMARI, S., AND SCHÄFER, F. P. **Absorption of femtosecond laser pulses in high-density plasma**. *Physical Review Letters 64*, 11 (1990), 1250–1253.

[6] COUAIRON, A., AND MYSYROWICZ, A. **Femtosecond filamentation in transparent media**. *Physics Report 441* (2007), 47–189.

[7] SUDRIE, L., COUAIRON, A., FRANCO, M., LAMOUROUX, B., PRADE, B., TZORTZAKIS, S., AND MYSYROWICZ, A. **Femtosecond laser-induced damage and filamentary propagation in fused silica**. *Physical Review Letters 89*, 186601 (2002).

[8] DURNIN, J., MICELI JR, J., AND EBERLY, J. H. **Diffraction-free beams**. *Physical Review Letters 58*, 15 (1987), 1499–1501.

[9] DURNIN, J. **Exact solutions for nondiffracting beams. I. The scalar theory**. *Journal of Optical Society of America A 4*, 4 (1987), 651–654.

[10] POLESANA, P., FRANCO, M., COUAIRON, A., FACCIO, D., AND DI TRAPANI, P. **Filamentation in Kerr media from pulsed Bessel beams**. *Physical Review A 77*, 043814 (2008).

[11] XIE, C., JUKNA, V., MILIÁN, C., GIUST, R., OUADGHIRI-IDRISSI, I., ITINA, T., DUDLEY, J. M., COUAIRON, A., AND COURVOISIER, F. **Tubular filamentation for laser material processing**. *Scientific Reports 5*, 8914 (2015).

[12] POLESANA, P., FACCIO, D., DI TRAPANI, P., DUBIETIS, A., PISKARSKAS, A., COUAIRON, A., AND PORRAS, M. A. **High localization, focal depth and contrast by means of nonlinear Bessel beams.** *Optics Express 13*, 16 (2005), 6160–6167.

[13] BHUYAN, M. K., COURVOISIER, F., LACOURT, P. A., JACQUOT, M., SALUT, R., FURFARO, L., AND DUDLEY, J. M. **High aspect ratio nanochannel machining using single shot femtosecond Bessel beams**. *Applied Physics Letters 97*, 081102 (2010).

[14] RAPP, L., MEYER, R., GIUST, R., FURFARO, L., JACQUOT, M., LACOURT, P. A., DUDLEY, J. M., AND COURVOISIER, F. **High aspect ratio micro-explosions in the bulk of sapphire generated by femtosecond Bessel beams**. *Scientific Reports 6*, 34286 (2016).

[15] XIE, C., GIUST, R., ZHANG, J., JUKNA, V., MEYER, R., FURFARO, L., JACQUOT, M., FROEHLY, L., DUDLEY, J. M., COUAIRON, A., AND COURVOISIER, F. **Enhanced absorption and plasmon excitation in the bulk of fused silica with femtosecond Bessel beams**. In *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2016)* (San Jose, United States, 2016), STh3Q.2.

[16] GARZILLO, V., JUKNA, V., COUAIRON, A., GRIGUTIS, R., DI TRAPANI, P., AND JEDRKIEWICZ, O. **Optimization of laser energy deposition for single-shot high aspect-ratio microstructuring of thick BK7 glass**. *Journal of Applied Physics 120*, 013102 (2016).

[17] AHMED, F., LEE, M. S., SEKITA, H., SUMIYOSHI, T., AND KAMATA, M. **Display glass cutting by femtosecond laser induced single shot periodic void array**. *Applied Physics A 93*, 1 (2008), 189–192.

[18] BHUYAN, M. K., JEDRKIEWICZ, O., SABONIS, V., MIKUTIS, M., RECCHIA, S., APREA, A., BOLLANI, M., AND DI TRAPANI, P. **High-speed laser-assisted cutting of strong transparent materials using picosecond Bessel beams**. *Applied Physics A 120*, 2 (2015), 443–446.

[19] RAPP, L., MEYER, R., FURFARO, L., BILLET, C., GIUST, R., AND COURVOISIER, F. **High speed cleaving of crystals with ultrafast Bessel beams**. *Optics Express 25*, 8 (2017), 9312–9317.

[20] CHICHKOV, B., MOMMA, C., NOLTE, S., VON ALVENSLEBEN, F., AND TÜNNERMANN, A. **Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids**. *Applied Physics A 63* (1996), 109–115.

[21] STUART, B., FEIT, M., HERMAN, S., RUBENCHIK, A., B.W, SHORE, AND PERRY, M. **Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics**. *Physical Review B 53*, 4 (1996), 1749–1761.

[22] RETHFELD, B., SOKOLOWSKI-TINTEN, K., VON DER LINDE, D., AND ANISIMOV, S. **Timescales in the response of materials to femtosecond laser excitation**. *Applied Physics A 79*, 4-6 (2004), 767–769.

[23] PHILLIPS, K. C., GANDHI, H. H., MAZUR, E., AND SUNDARAM, S. K. **Ultrafast laser processing of materials: a review**. *Advances in Optics and Photonics 7*, 4 (2015), 684–712.

[24] PRONKO, P., DUTTA, S., SQUIER, J., RUDD, J., DU, D., AND MOUROU, G. **Machining of sub-micron holes using a femtosecond laser at 800 nm**. *Optics Communications 114*, 1-2 (1995), 106–110.

[25] COUAIRON, A., SUDRIE, L., FRANCO, M., PRADE, B., AND MYSYROWICZ, A. **Filamentation and damage in fused silica induced by tightly focused femtosecond laser pulses**. *Physical Review B 71*, 125435 (2005).

[26] VOGEL, A., NOACK, J., HÜTTMAN, G., AND PALTAUF, G. **Mechanisms of femtosecond laser nanosurgery of cells and tissues**. *Applied Physics B 81* (2005), 1015–1047.

[27] QUÉRÉ, F., GUIZARD, S., AND MARTIN, P. **Time-resolved study of laser-induced breakdown in dielectrics**. *Europhysics Letters (EPL) 56*, 1 (2001), 138–144.

[28] BROUWER, N., AND RETHFELD, B. **Excitation and relaxation dynamics in dielectrics irradiated by an intense ultrashort laser pulse**. *Journal of the Optical Society of America B 31*, 11 (2014), C28–C35.

[29] CHEN, F. F. **Introduction to Plasma Physics and Controlled Fusion**. Plenum Publishing Corporation, 1984, p. 116.

[30] AUDEBERT, P., DAGUZAN, P., SANTOS, A. D., GAUTHIER, J. C., GEINDRE, J. P., GUIZARD, S., HAMONIAUX, G., KRASTEV, K., MARTIN, P., PETITE, G., AND ANTONETTI, A. **Space-time observation of an electron gas in SiO2**. *Physical Review Letters 73*, 14 (1994), 1990–1993.

[31] MAO, S., QUÉRÉ, F., GUIZARD, S., MAO, X., RUSSO, R., PETITE, G., AND MARTIN, P. **Dynamics of femtosecond laser interactions with dielectrics**. *Applied Physics A 79*, 7 (2004), 1695–1709.

[32] KERR, J. **A new relation between electricity and light: Dielectrified media birefringent**. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science 50*, 332 (1875), 337–348.

[33] KELLEY, P. **Self-focusing of optical beams**. *Physical Review Letters 15*, 1005 (1965).

[34] AKHMANOV, S. A., SUKHORUKOV, A. P., AND KHOKHLOV, R. **Self-focusing and diffraction of light in a nonlinear medium**. *Soviet physics USPEKHI 10*, 5 (1968), 609–636.

[35] SHEN, Y.-R. **Self-focusing: experimental**. *Progress in quantum electronics 4* (1975), 1–34.

[36] DRUDE, P. **Zur Elektronentheorie der Metalle**. *Annalen der Physik 306*, 3 (1900), 566–613.

[37] FEIT, M. D., AND FLECK, J. A. **Effect of refraction on spot-size dependence of laser-induced breakdown**. *Applied Physics Letters 24*, 4 (1974), 169–172.

[38] BERGÉ, L., SKUPIN, S., LEDERER, F., MÉJEAN, G., YU, J., KASPARIAN, J., SALMON, E., WOLF, J. P., RODRIGUEZ, M., WÖSTE, L., BOURAYOU, R., AND SAUERBREY, R. **Multiple filamentation of terawatt laser pulses in air**. *Physical Review Letters 92*, 225002 (2004).

[39] KASPARIAN, J., AND WOLF, J.-P. **Physics and applications of atmospheric nonlinear optics and filamentation**. *Optics Express 16*, 1 (2008), 466–493.

[40] MCLEOD, J. H. **The axicon: a new type of optical element**. *Journal of the Optical Society of America 44*, 8 (1954), 592–597.

[41] GONZALEZ-ACUÑA, R. G., AND GUITIÉRREZ-VEGA, J. C. **Generalization of the axicon shape: the gaxicon**. *Journal of the Optical Society of America A 35*, 11 (2018), 1915–1918.

[42] LAPOINTE, M. R. **Review of non-diffracting Bessel beam experiments**. *Optics & Laser Technology 24* (1992), 315–321.

[43] BOUCHER, P., HOYO, J. D., BILLET, C., PINEL, O., LABROILLE, G., AND COURVOISIER, F. **Generation of high conical angle Bessel-Gauss beams with reflective axicons**. *Applied Optics 57*, 23 (2018), 6725–6728.

[44] XIE, C., GIUST, R., JUKNA, V., FURFARO, L., JACQUOT, M., LACOURT, P.-A., FROEHLY, L., DUDLEY, J., COUAIRON, A., AND COURVOISIER, F. **Light trajectory in Bessel-Gauss vortex beams**. *Journal of the Optical Society of America A, Optics and Image Science 32*, 7 (2015), 1313–1316.

[45] MCGLOIN, D., AND DHOLAKIA, K. **Bessel beams: diffraction in a new light**. *Contemporary Physics 46*, 1 (2005), 15–28.

[46] VAICAITIS, V., AND PAULIKAS, S. **Formation of Bessel beams with continuously variable cone angle**. *Optical and Quantum Electronics 35* (2003), 1065–1071.

[47] JARUTIS, V., PASSKAUSKAS, R., AND STABINIS, A. **Focusing of Laguerre-Gaussian beams by axicon**. *Optics Communications 184* (2000), 105–112.

[48] SIMON, D. S. **A Guided Tour of Light Beams. From lasers to optical knots.** Morgan & Claypool, 2016, ch. Bessel beams, self-healing, and diffraction-free propagation, pp. 1–15.

[49] ARLT, J., GARCÉS-CHÁVEZ, V., SIBBETT, W., AND DHOLAKIA, K. **Optical micromanipulation using a Bessel-light beam**. *Optics Communications 197*, (4-6) (2001), 239–245.

[50] GARCÉS-CHÁVEZ, V., MCGLOIN, D., MELVILLE, H., SIBBETT, W., AND DHOLAKIA, K. **Simultaneous micromanipulation in multiple planes using a self-reconstructing light beam**. *Nature 419*, 6903 (2002), 145–147.

[51] ČIŽMÁR, T., MAZILU, M., AND DHOLAKIA, K. **In situ wavefront correction and its application to micromanipulation**. *Nature Photonics 4*, 6 (2010), 388–394.

[52] LEITGEB, R. A., VILLIGER, M., BACHMANN, A. H., STEINMANN, L., AND LASSER, T. **Extended focus depth for Fourier domain optical coherence microscopy**. *Optics Letters 31*, 16 (2006), 2450–2452.

[53] FAHRBACH, F. O., SIMON, P., AND ROHRBACH, A. **Microscopy with self-reconstructing beams**. *Nature Photonics 4*, 11 (2010), 780–785.

[54] PURNAPATRA, S. B., BERA, S., AND MONDAL, P. P. **Spatial filter based Bessel-like beam for improved penetration depth imaging in fluorescence microscopy**. *Scientific Reports 2*, 692 (2012).

[55] WEBER, N., SPETHER, D., SEIFERT, A., AND ZAPPE, H. **Highly compact imaging using Bessel beams generated by ultraminiaturized multi-micro-axicon systems**. *Journal of the Optical Society of America A 29*, 5 (2012), 808–816.

[56] HAFIZI, B., ESAREY, E., AND SPRANGLE, P. **Laser-driven acceleration with Bessel beams**. *Physical Review E 55*, 3 (1997), 3539–3545.

[57] HAFIZI, B., GANGULY, A. K., TING, A., MOORE, C. I., AND SPRANGLE, P. **Analysis of Gaussian beam and Bessel beam driven laser accelerators**. *Physical Review E 60*, 4 (1999), 4779–4792.

[58] KUMAR, S., PAROLA, A., DI TRAPANI, P., AND JEDRKIEWICZ, O. **Laser plasma wakefield acceleration gain enhancement by means of accelerating Bessel pulses**. *Applied Physics B 123*, 185 (2017).

[59] KOSTIN, V. A., AND VVEDENSKII, N. V. **Ionization-induced conversion of ultrashort Bessel beam to terahertz pulse**. *Optics Letters 35*, 2 (2010), 247–279.

[60] XU, S., LI, Y., LIANG, X., CAO, H., HU, M., CHAI, L., AND WANG, C. **Generation of Terahertz radioation by optique rectification using femtoseconde Bessel beams**. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics 23*, 4 (2016), 1–6.

[61] CLERICI, M., HU, Y., LASSONDE, P., MILLIÁN, C., COUAIRON, A., CHRISTODOULIDES, D. N., CHEN, Z., RAZZARI, L., VIDAL, F., LÉGARÉ, F., FACCIO, F., AND MORANDOTTI, R. **Laser-assisted guiding of electric discharges around objects.** *Science Advances 1*, e1400111 (2015).

[62] AVERCHI, A., FACCIO, D., BERLASSO, R., KOLESIK, M., MOLONEY, J. V., COUAIRON, A., AND DI TRAPANI, P. **Phase matching with pulsed Bessel beams for high-order harmonic generation**. *Physical Review A 77*, 021802 (2008).

[63] COURVOISIER, F., STOIAN, R., AND COUAIRON, A. **Ultrafast laser micro- and nano-processing with nondiffracting and curved beams**. *Optics & Laser Technology 80* (2016), 125–137.

[64] STOIAN, R., BHUYAN, M. K., ZHANG, G., CHENG, G., MEYER, R., AND COURVOISIER, F. **Ultrafast Bessel beams: advanced tools for laser materials processing**. *Advanced Optical Technologies 7*, 3 (2018), 165–174.

[65] ZAMBON, V., MCCARTHY, N., AND PICHÉ, M. **Material modifications with ultrafast Bessel beams**. In *2009 Frontiers in Optics* (2009), Optical Society of America, p. jTuC15.

[66] DHARMADHIKARI, J. A., BERNARD, R., BHATNAGAR, A. K., MATHUR, D., AND DHARMADHIKARI, A. K. **Axicon-based writing of waveguides in BK7 glass**. *Optics Letters 38*, 2 (2013), 172–174.

[67] COURVOISIER, F., LACOURT, P.-A., JACQUOT, M., BHUYAN, M. K., FURFARO, L., AND DUDLEY, J. M. **Surface nanoprocessing with nondiffracting femtosecond Bessel beams**. *Optics Letters 34*, 20 (2009), 3163–3165.

[68] CHENG, W., AND POLYNKIN, P. **Micromachining of borosilicate glass surfaces using femtosecond higher-order Bessel beams**. *Journal of the Optical Society of America B 31*, 11 (2014), C48–C52.

[69] BHUYAN, M. K., COURVOISIER, F., LACOURT, P.-A., JACQUOT, M., FURFARO, L., WITHFORD, M. J., AND DUDLEY, J. M. **High aspect ratio taper-free microchannel fabrication using femtosecond Bessel beams**. *Optics Express 18*, 2 (2010), 566–574.

[70] BHUYAN, M., COURVOISIER, F., PHING, H., JEDRKIEWICZ, O., RECCHIA, S., TRAPANI, P. D., AND DUDLEY, J. **Laser micro- and nanostructuring using femtosecond Bessel beams**. *European Physical Journal Special Topics 199* (2011), 101–110.

[71] YU, Y., JIANG, L., CAO, Q., XIA, B., WANG, Q., AND LU, Y. **Pump-probe imaging of the fs-ps-ns dynamics during femtosecond laser Bessel beam drilling in PMMA**. *Optics Express 23*, 25 (2015), 32728–32735.

[72] MATSUOKA, Y., KIZUKA, Y., AND INOUE, T. **The characteristics of laser microdrilling using a Bessel beam**. *Applied Physics A 84*, 4 (2006), 423–430.

[73] YU, X., TRALLERO-HERRERO, C. A., AND LEI, S. **Materials processing with superposed Bessel beams**. *Applied Surface Science 360*, Part B (2015), 833–839.

[74] WETZEL, B., XIE, C., LACOURT, P.-A., DUDLEY, J. M., AND COURVOISIER, F. **Femtosecond laser fabrication of micro and nano-disks in single layer graphene using vortex Bessel beams**. *Applied Physics Letters 103*, 241111 (2013).

[75] GIL-VILLALBA, A., MEYER, R., GIUST, R., RAPP, L., BILLET, C., AND COURVOISIER, F. **Single shot femtosecond laser nano-ablation of CVD monolayer graphene**. *Scientific Reports 8*, 14601 (2018).

[76] VETTER, C. **Radially self-accelerating optical beams**. PhD thesis, University of Jena, 2017.

[77] SHANNON, C. E. **Communication in the presence of noise**. *Proceedings of the IRE 37*, 1 (1949), 10–21.

[78] FERNÁNDEZ, E. J., PRIETO, P. M., AND ARTAL, P. **Wave-aberration control with a liquid crystal on silicon (LCOS) spatial phase modulator**. *Optics Express 17*, 13 (2009), 11013–11025.

[79] KATZ, O., SMALL, E., AND SILBERBERG, Y. **Looking around corners and through thin turbid layers in real time with scattered incoherent light**. *Nature Photonics 6*, 8 (2012), 549–553.

[80] KANG, S., KANG, P., JEONG, S., KWON, Y., YANG, T. D., HONG, J. H., KIM, M., SONG, K., PARK, J. H., LEE, J. H., KIM, M. J., KIM, K. H., AND CHOI, W. **High-resolution adaptive optical imaging within thick scattering media using closed-loop accumulation of single scattering**. *Nature Communications 8*, 2157 (2017).

[81] DIFATO, F., MASCHIO, M. D., BELTRAMO, R., BLAU, A., BENFENATI, F., AND FELLIN, T. **Spatial light modulators for complex spatiotemporal illumination of neuronal networks**. In *Neuromethods*. Humana Press, 2011, pp. 61–81.

[82] BUENO, J., MAKTOOBI, S., FROEHLY, L., FISCHER, I., JACQUOT, M., LARGER, L., AND BRUNNER, D. **Reinforcement learning in a large-scale photonic recurrent neural network**. *Optica 5*, 6 (2018), 756–760.

[83] JACK, B., LEACH, J., ROMERO, J., FRANKE-ARNOLD, S., RITSCH-MARTE, M., BARNETT, S. M., AND PADGETT, M. J. **Holographic ghost imaging and the violation of a Bell inequality**. *Physical Review Letters 103*, 083602 (2009).

[84] WANG, Y., LIU, Y., SUO, J., SITU, G., QIAO, C., AND DAI, Q. **High speed computational ghost imaging via spatial sweeping**. *Scientific Reports 7*, 45325 (2017).

[85] HAYASAKI, Y., SUGIMOTO, T., TAKITA, A., AND NISHIDA, N. **Variable holographic femtosecond laser processing by use of a spatial light modulator**. *Applied Physics Letters 87*, 031101 (2005).

[86] KOZACKI, T. **Holographic display with tilted spatial light modulator**. *Applied Optics 50*, 20 (2011), 3579–3588.

[87] HAYASAKI, Y., AND KUMAGAI, K. **Volumetric display with holographic femtosecond laser accesses**. In *Imaging and Applied Optics 2018 (3D, AO, AIO, COSI, DH, IS, LACSEA, LS&C, MATH, pcAOP)* (2018), OSA.

[88] GIBSON, G. M., LEACH, J., KEEN, S., WRIGHT, A. J., AND PADGETT, M. J. **Measuring the accuracy of particle position and force in optical tweezers using high-speed video microscopy**. *Optics Express 16*, 19 (2008), 14561–14570.

[89] HASEGAWA, S., ITO, H., TOYODA, H., AND HAYASAKI, Y. **Massively parallel femtosecond laser processing**. *Optics Express 24*, 16 (2016), 18513–18524.

[90] CHATTRAPIBAN, N., ROGERS, E. A., COFIELD, D., WENDELL T. HILL, I., AND ROY, R. **Generation of nondiffracting Bessel beams by use of a spatial light modulator**. *Optics Letters 28*, 22 (2003), 2183–2185.

[91] VASILYEU, R., DUDLEY, A., KHILO, N., AND FORBES, A. **Generating superpositions of higher–order Bessel beams**. *Optics Express 17*, 26 (2009), 23389–23395.

[92] LOTTI, A., FACCIO, D., COUAIRON, A., PAPAZOGLOU, D. G., PANAGIOTOPOULOS, P., ABDOLLAHPOUR, D., AND TZORTZAKIS, S. **Stationary nonlinear Airy beams**. *Physical Review A 84*, 021807 (2011).

[93] PANAGIOTOPOULOS, P., PAPAZOGLOU, D., COUAIRON, A., AND TZORTZAKIS, S. **Sharply autofocused ring-Airy beams transforming into non-linear intense light bullets**. *Nature Communications 4*, 2622 (2013).

[94] VETTER, C., EICHELKRAUT, T., ORNIGOTTI, M., AND SZAMEIT, A. **Generalized radially self-accelerating helicon beams**. *Physical Review Letters 113*, 183901 (2014).

[95] MATHIS, A., FROEHLY, L., TOENGER, S., DIAS, F., GENTY, G., AND DUDLEY, J. M. **Caustics and rogue waves in an optical sea**. *Scientific Reports 5*, 12822 (2015).

[96] WEINER, A. M. **Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators**. *Review of Scientific Instruments 71*, 5 (2000), 1929–1960.

[97] MONMAYRANT, A., WEBER, S., AND CHATEL, B. **A newcomer's guide to ultrashort pulse shaping and characterization**. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics 43*, 103001 (2010).

[98] KÖHLER, J., WOLLENHAUPT, M., BAYER, T., SARPE, C., AND BAUMERT, T. **Zeptosecond precision pulse shaping**. *Optics Express 19*, 12 (2011), 11638.

[99] GOODMAN, J. W. **Introduction to Fourier optics**. Roberts and Company Publishers, 2005.

[100] FROEHLY, L., JACQUOT, M., LACOURT, P. A., DUDLEY, J. M., AND COURVOISIER, F. **Spatiotemporal structure of femtosecond Bessel beams from spatial light modulators**. *Journal of Optical Society of America A 31*, 4 (2014), 790–793.

[101] LEACH, J., GIBSON, G. M., PADGETT, M. J., ESPOSITO, E., MCCONNELL, G., WRIGHT, A. J., AND GIRKIN, J. M. **Generation of achromatic Bessel beams using a compensated spatial light modulator**. *Optics Express 14*, 12 (2006), 5581–5587.

[102] OUADGHIRI-IDRISSI, I., DUDLEY, J. M., AND COURVOISIER, F. **Controlling nonlinear instabilities in Bessel beams through longitudinal intensity shaping**. *Optics Letters 42*, 19 (2017), 3785–3788.

[103] OUADGHIRI IDRISSI, I., DUDLEY, J. M., AND COURVOISIER, F. **Control of spatial four-wave-mixing efficiency in Bessel beams using longitudinal intensity shaping**. *Physical Review A 100*, 043804 (2019).

[104] DAVIS, J. A., COTTRELL, D. M., CAMPOS, J., YZUEL, M. J., AND MORENO, I. **Encoding amplitude information onto phase-only filters**. *Applied Optics 38*, 23 (1999), 5004–5013.

[105] ZHU, L., AND WANG, J. **Arbitrary manipulation of spatial amplitude and phase using phase-only spatial light modulators**. *Scientific Reports 4*, 07441 (2014).

[106] RODENBURG, B., MIRHOSSEINI, M., MAGAÑA-LOAIZA, O. S., AND BOYD, R. W. **Experimental generation of an optical field with arbitrary spatial coherence properties**. *Journal of the Optical Society of America B 31*, 6 (2014), A51–A55.

[107] BOLDUC, E., BENT, N., SANTAMATO, E., KARIMI, E., AND BOYD, R. W. **Exact solution to simultaneous intensity and phase encryption with a single phase-only hologram**. *Optics Letters 38*, 18 (2013), 3546–3549.

[108] OUADGHIRI IDRISSI, I., GIUST, R., FROEHLY, L., JACQUOT, M., FURFARO, L., DUDLEY, J. M., AND COURVOISIER, F. **Arbitrary shaping of on-axis amplitude of femtosecond Bessel beams with a single phase-only spatial light modulator**. *Optics Express 24*, 11 (2016), 11495–11504.

[109] ČIŽMÁR, T., AND DHOLAKIA, K. **Tunable Bessel light modes: engineering the axial propagation**. *Optics express 17*, 18 (2009), 15558–15570.

[110] COURVOISIER, F., ZHANG, J., BHUYAN, M., JACQUOT, M., AND DUDLEY, J. **Applications of femtosecond Bessel beams to laser ablation**. *Applied Physics A 112* (2013), 29–34.

[111] WINKLER, S., BURAKOV, I., STOIAN, R., BULGAKOVA, N., HUSAKOU, A., MERMILLOD-BLONDIN, A., ROSENFELD, A., ASHKENASI, D., AND HERTEL, I. **Transient response of dielectric materials exposed to ultrafast laser radiation**. *Applied Physics A 84*, 4 (2006), 413–422.

[112] GAMALY, E. G. **Femtosecond Laser-Matter Interaction**. Pan Stanford, 2011.

[113] GLEZER, E. N., AND MAZUR, E. **Ultrafast-laser driven micro-explosions in transparent materials**. *Applied Physics Letters 71*, 7 (1997), 882–884.

[114] JUODKAZIS, S., NISHIMURA, K., TANAKA, S., MISAWA, H., GAMALY, E. G., LUTHER-DAVIES, B., HALLO, L., NICOLAI, P., AND TIKHONCHUK, V. T. **Laser-induced microexplosion confined in the bulk of a sapphire crystal: Evidence of multimegabar pressures**. *Physical Review Letters 96*, 166101 (2006).

[115] GAMALY, E. G., JUODKAZIS, S., NISHIMURA, K., MISAWA, H., LUTHER-DAVIES, B., HALLO, L., NICOLAI, P., AND TIKHONCHUK, V. T. **Laser-matter interaction in the bulk of a transparent solid: Confined microexplosion and void formation**. *Physical Review B 73*, 214101 (2006).

[116] GAMALY, E. G., JUODKAZIS, S., MISAWA, H., LUTHER-DAVIES, B., RODE, A. V., HALLO, L., NICOLAI, P., AND TIKHONCHUK, V. T. **Formation of nano-voids in transparent dielectrics by femtosecond lasers**. *Current Applied Physics 8*, 3-4 (2008), 412–415.

[117] GAMALY, E., VAILIONIS, A., MIZEIKIS, V., YANG, W., RODE, A., AND JUODKAZIS, S. **Warm dense matter at the bench-top: Fs-laser-induced confined micro-explosion**. *High Energy Density Physics 8* (2012), 13–17.

[118] BEUTON, R., CHIMIER, B., BREIL, J., HÉBERT, D., MAIRE, P.-H., AND DUCHATEAU, G. **Thermo-elasto-plastic simulations of femtosecond laser-induced structural modifications: Application to cavity formation in fused silica**. *Journal of Applied Physics 122*, 203104 (2017).

[119] MIZEIKIS, V., KIMURA, S., SUROVTSEV, N. V., JARUTIS, V., SAITO, A., MISAWA, H., AND JUODKAZIS, S. **Formation of amorphous sapphire by a femtosecond laser pulse induced micro-explosion**. *Applied Surface Science 255*, 24 (2009), 9745–9749.

[120] BHUYAN, M. K., SOMAYAJI, M., MERMILLOD-BLONDIN, A., BOURQUARD, F., COLOMBIER, J. P., AND STOIAN, R. **Ultrafast laser nanostructuring in bulk silica, a "slow" microexplosion**. *Optica 4*, 8 (2017), 951–958.

[121] TÖRÖK, P., VARGA, P., LACZIK, Z., AND BOOKER, G. R. **Electromagnetic diffraction of light focused through a planar interface between materials of mismatched refractive indices: an integral representation**. *Journal of the Optical Society of America A 12*, 2 (1995), 325–332.

[122] EGNER, A., AND HELL, S. W. **Equivalence of the Huygens-Fresnel and Debye approach for the calculation of high aperture point-spread functions in the presence of refractive index mismatch**. *Journal of Microscopy 193*, 3 (1999), 244–249.

[123] TSAI, W.-J., GU, C.-J., CHENG, C.-W., AND HORNG, J.-B. **Internal modification for cutting transparent glass using femtosecond Bessel beams**. *Optical Engineering 53*, 051503 (2014).

[124] BELLOUARD, Y., CHAMPION, A., MCMILLEN, B., MUKHERJEE, S., THOMSON, R. R., PÉPIN, C., GILLET, P., AND CHENG, Y. **Stress-state manipulation in fused silica via femtosecond laser irradiation**. *Optica 3*, 12 (2016), 1285–1293.

[125] JUODKAZIS, S., KOHARA, S., OHISHI, Y., HIRAO, N., VAILIONIS, A., MIZEIKIS, V., SAITO, A., AND RODE, A. **Structural changes in femtosecond laser modified regions inside fused silica**. *Journal of Optics 12*, 124007 (2010).

[126] KUDRIAŠOV, V., GAIŽAUSKAS, E., AND SIRUTKAITIS, V. **Birefringent modifications induced by femtosecond filaments in optical glass**. *Applied Physics A 93* (2008), 571–576.

[127] HU, H., WANG, X., AND H.ZHAI. **High-fluence femtosecond laser ablation of silica glass: effects of laser-induced pressure**. *Journal of Physics D 44*, 135202 (2011).

[128] FERNANDES, L. A., GRENIER, J. R., HERMAN, P. R., AITCHISON, J. S., AND MARQUES, P. V. S. **Stress induced birefringence tuning in femtosecond laser fabricated waveguides in fused silica**. *Optics Express 20*, 22 (2012), 24103–24114.

[129] CORBARI, C., CHAMPION, A., GECEVIČIUS, M., BERESNA, M., BELLOUARD, Y., AND KAZANSKY, P. G. **Femtosecond versus picosecond laser machining of nano-gratings and micro-channels in silica glass**. *Optics Express 21*, 4 (2013), 3946–3958.

[130] MCMILLEN, B., AND BELLOUARD, Y. **On the anisotropy of stress-distribution induced in glasses and crystals by non-ablative femtosecond laser exposure**. *Optics Express 23*, 1 (2015), 86–100.

[131] MARCINKEVIČIUS, A., JUODKAZIS, S., WATANABE, M., MIWA, M., MATSUO, S., MISAWA, H., AND NISHII, J. **Femtosecond laser-assisted three-dimensional microfabrication in silica**. *Optics Letters 26*, 5 (2001), 277–279.

[132] RAJESH, S., AND BELLOUARD, Y. **Towards fast femtosecond laser micromachining of fused silica: The effect of deposited energy.** *Opt. Express 18*, 20 (2010), 21490–21497.

[133] DOSTOVALOV, A. V., WOLF, A. A., MEZENTSEV, V. K., OKHRIMCHUK, A. G., AND BABIN, S. A. **Quantitative characterization of energy absorption in femtosecond laser micro-modification of fused silica**. *Optics Express 23*, 25 (2015), 32541–32574.

[134] ZOUBIR, A., RIVERO, C., GRODSKY, R., RICHARDSON, K., RICHARDSON, M., CARDINAL, T., AND COUZI, M. **Laser-induced defects in fused silica by femtosecond IR irradiation**. *Physical Review B 73*, 224117 (2006).

[135] WU, P.-H., YU, X.-Y., CHENG, C.-W., LIAO, C.-H., FENG, S.-W., AND WANG, H.-C. **Ultrafast ablation dynamics in fused silica with a white light beam probe**. *Optics Express 19*, 17 (2011), 16390–16400.

[136] DO, B. T., PHILLIPS, M. C., MILLER, P. A., KIMMEL, M. W., BRITSCH, J., AND CHO, S.-H. **Properties of optical breakdown in BK7 glass induced by an extended-cavity femtosecond laser oscillator**. *Optics Express 17*, 4 (2009), 2739–2755.

[137] DOCCHIO, F., REGONDI, P., CAPON, M. R. C., AND MELLERIO, J. **Study of the temporal and spatial dynamics of plasmas induced in liquids by nanosecond Nd:YAG laser pulses 2: Plasma luminescence and shielding**. *Applied Optics 27*, 17 (1988), 3669–3674.

[138] MIYAMOTO, I., OKAMOTO, Y., TANABE, R., ITO, Y., CVECEK, K., AND SCHMIDT, M. **Mechanism of dynamic plasma motion in internal modification of glass by fs-laser pulses at high pulse repetition rate**. *Optics Express 24*, 22 (2016), 25718–25731.

[139] MUYDRIDGE, J. **The Horse in Motion**. *Nature 25*, 652 (1882), 605.

[140] EDGERTON, H. E., AND JR., J. R. K. **Flash ! Seeing the Unseen by Ultra-High Speed Photography**. Hale, Cushman & Flint, 1939, p. 123.

[141] EDGERTON, H. E., AND JR., J. R. K. **Flash ! Seeing the Unseen by Ultra-High Speed Photography**. Hale, Cushman & Flint, 1939, pp. 52–53.

[142] ABRAHAM, E., MINOSHIMA, K., AND MATSUMOTO, H. **Femtosecond laser-induced breakdown in water: time-resolved shadow imaging and two-color interferometric imaging**. *Optics Communications 176*, 4-6 (2000), 441–452.

[143] CHOWDHURY, I., WU, A., XU, X., AND WEINER, A. **Ultra-fast laser absorption and ablation dynamics in wide-band-gap dielectrics**. *Applied Physics A 81*, 8 (2005), 1627–1632.

[144] GOPAL, A., MINARDI, S., AND TATARAKIS, M. **Quantitative two-dimensional shadowgraphic method for high-sensitivity density measurement of under-critical laser plasmas**. *Optics Letters 32*, 10 (2007), 1238–1240.

[145] WANG, G., YU, Y., JIANG, L., LI, X., XIE, Q., AND LU, Y. **Cylindrical shockwave-induced compression mechanism in femtosecond laser Bessel pulse micro-drilling of PMMA**. *Applied Physics Letters 110*, 161907 (2017).

[146] DOWNER, M. C., FORK, R. L., AND SHANK, C. V. **Femtosecond imaging of melting and evaporation at a photoexcited silicon surface**. *Journal of the Optical Society of America B 2*, 4 (1985), 595–599.

[147] VON DER LINDE, D., AND SCHÜLER, H. **Breakdown threshold and plasma formation in femtosecond laser–solid interaction**. *Journal of the Optical Society of America B 13*, 1 (1996), 216–222.

[148] KUMADA, T., AKAGI, H., ITAKURA, R., OTOBE, T., AND YOKOYAMA, A. **Femtosecond laser ablation dynamics of fused silica extracted from oscillation of time-resolved reflectivity**. *Journal of Applied Physics 115*, 103504 (2014).

[149] COFFY, E., DODANE, G., EUPHRASIE, S., MOSSET, A., VAIRAC, P., MARTIN, N., BAIDA, H., RAMPNOUX, J. M., AND DILHAIRE, S. **Anisotropic propagation imaging of elastic waves in oriented columnar thin films**. *Journal of Physics D 50*, 484005 (2017).

[150] WOUTERSEN, S. **Femtosecond mid-IR pump-probe spectroscopy of liquid water: Evidence for a two-component structure**. *Science 278*, 5338 (1997), 658–660.

[151] HORN, A., MINGAREEV, I., WERTH, A., KACHEL, M., AND BRENK, U. **Non-interferometric transient quantitative phase microscopy for ultrafast engineering**. *Applied Physics A 93*, 1 (2008), 165–169.

[152] HAYASAKI, Y., ISAKA, M., TAKITA, A., AND JUODKAZIS, S. **Time-resolved interferometry of femtosecond-laser-induced processes under tight focusing and close-to-optical breakdown inside borosilicate glass**. *Optics Express 19*, 7 (2011), 5725–5734.

[153] HAYASAKI, Y., ICHI FUKUDA, S., HASEGAWA, S., AND JUODKAZIS, S. **Two-color pump-probe interferometry of ultra-fast light-matter interaction**. *Scientific Reports 7*, 10405 (2017).

[154] BERGNER, K., SEYFARTH, B., LAMMERS, K. A., ULLSPERGER, T., DÖRING, S., HEINRICH, M., KUMKAR, M., FLAMM, D., TÜNNERMANN, A., AND NOLTE, S. **Spatio-temporal analysis of glass volume processing using ultrashort laser pulses**. *Applied Optics 57*, 16 (2018), 4618–4632.

[155] PAPAZOGLOU, D. G., AND TZORTZAKIS, S. **In-line holography for the characterization of ultrafast laser filamentation in transparent media**. *Applied Physics Letters 93*, 041120 (2008).

[156] WINKLER, T., HAAHR-LILLEVANG, L., SARPE, C., ZIELINSKI, B., GÖTTE, N., SENFTLEBEN, A., BALLING, P., AND BAUMERT, T. **Laser amplification in excited dielectrics**. *Nature Physics 14*, 1 (2017), 74–79.

[157] BERGNER, K., MÜLLER, M., KLAS, R., LIMPERT, J., NOLTE, S., AND TÜNNERMAN, A. **Scaling ultrashort laser pulse induced glass modifications for cleaving applications**. *Applied Optics 57*, 21 (2018), 5941–5947.

[158] JENNE, M., ZIMMERMANN, F., FLAMM, D., GROSSMANN, D. G., KLEINER, J., KUMKAR, M., AND NOLTE, S. **Multi pulse pump-probe diagnostics for development of advanced transparent materials processing**. *Journal of Laser Micro/Nanoengineering 13*, 3 (2018), 273–279.

[159] FISCHER, M. C., WILSON, J. W., ROBLES, F. E., AND WARREN, W. S. **Invited review article: Pump-probe microscopy**. *Review of Scientific Instruments 87*, 031101 (2016).

[160] WEINER, A. **Ultrafast optics**, vol. 72. John Wiley & Sons, 2011.

[161] TREACY, E. **Optical pulse compression with diffraction gratings**. *IEEE Journal of Quantum Electronics 5*, 9 (1969), 454–458.

[162] FORK, R. L., MARTINEZ, O. E., AND GORDON, J. P. **Negative dispersion using pairs of prisms**. *Optics Letters 9*, 5 (1984), 150–152.

[163] SZIPÖCS, R., SPIELMANN, C., KRAUSZ, F., AND FERENCZ, K. **Chirped multilayer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers**. *Optics Letters 19*, 3 (1994), 201–203.

[164] SCHAFFER, C., NISHIMURA, N., GLEZER, E., KIM, A.-T., AND MAZUR, E. **Dynamics of femtosecond laser-induced breakdown in water from femtoseconds to microseconds**. *Optics Express 10*, 3 (2002), 196–203.

[165] SAKAKURA, M., TERAZIMA, M., SHIMOTSUMA, Y., MIURA, K., AND HIRAO, K. **Observation of pressure wave generated by focusing a femtosecond laser pulse inside a glass**. *Optics Letters 15*, 9 (2007), 5674–5686.

[166] GROSSMANN, D., REININGHAUS, M., KALUPKA, C., KUMKAR, M., AND POPRAWE, R. **Transverse pump-probe microscopy of moving breakdown, filamentation and self-organized absorption in alkali aluminosilicate glass using ultrashort pulse laser**. *Optics Express 24*, 20 (2016), 23221–23231.

[167] BERGNER, K., FLAMM, D., JENNE, M., KUMKAR, M., TÜNNERMANN, A., AND NOLTE, S. **Time-resolved tomography of ultrafast laser-matter interaction**. *Optics Express 26*, 3 (2018), 2873–2883.

[168] KANE, D., AND TREBINO, R. **Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating**. *IEEE Journal of Quantum Electronics 29*, 2 (1993), 571–579.

[169] KANE, D. J., AND TREBINO, R. **Single-shot measurement of the intensity and phase of an arbitrary ultrashort pulse by using frequency-resolved optical gating**. *Optics Letters 18*, 10 (1993), 823–825.

[170] BALTUŠKA, A., PSHENICHNIKOV, M. S., AND WIERSMA, D. A. **Amplitude and phase characterization of 45-fs pulses by frequency-resolved optical gating**. *Optics Letters 23*, 18 (1998), 1474–1476.

[171] AKTURK, S., KIMMEL, M., O'SHEA, P., AND TREBINO, R. **Measuring spatial chirp in ultrashort pulses using single-shot Frequency-Resolved Optical Gating**. *Optics Express 11*, 1 (2003), 68–78.

[172] TREBINO, R., DELONG, K. W., FITTINGHOFF, D. N., SWEETSER, J. N., KRUMBÜGEL, M. A., RICHMAN, B. A., AND KANE, D. J. **Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating**. *Review of Scientific Instruments 68*, 9 (1997), 3277–3295.

[173] CLEMENT, T. S., KANE, D. J., AND TAYLOR, A. J. **Single-shot measurement of the amplitude and phase of ultrashort laser pulses in the violet**. *Optics Letters 20*, 1 (1995), 70–72.

[174] DUGUAY, M. A., AND HANSEN, J. W. **An ultrafast light gate**. *Applied Physics Letters 15*, 6 (1969), 192–194.

[175] TREBINO, R., AND KANE, D. J. **Using phase retrieval to measure the intensity and phase of ultrashort pulses: Frequency-Resolved Optical Gating**. *Journal of the Optical Society of America A 10*, 5 (1993), 1101–1111.

[176] SWEETSER, J. N., FITTINGHOFF, D. N., AND TREBINO, R. **Transient-grating frequency-resolved optical gating**. *Optics Letters 22*, 8 (1997), 519–521.

[177] LI, M., NIBARGER, J. P., GUO, C., AND GIBSON, G. N. **Dispersion-free transient-grating frequency-resolved optical gating**. *Applied Optics 38*, 24 (1999), 5250–5253.

[178] NAGY, T., AND SIMON, P. **Single-shot TG FROG for the characterization of ultrashort DUV pulses**. *Optics Express 17*, 10 (2009), 8144–8151.

[179] ERMOLOV, A., VALTNA-LUKNER, H., TRAVERS, J., AND RUSSELL, P. S. **Characterization of few-fs deep-UV dispersive waves by ultra-broadband transient-grating XFROG**. *Optics Letters 41*, 23 (2016), 5535–5538.

[180] LEE, D., AKTURK, S., GABOLDE, P., AND TREBINO, R. **Experimentally simple, extremely broadband transient-grating frequency-resolved-opticalgating arrangement**. *Optics Express 15*, 2 (2007), 760–766.

[181] VALTNA-LUKNER, H., BELLI, F., ERMOLOV, A., KÖTTIG, F., MAK, K. F., TANI, F., TRAVERS, J. C., AND RUSSELL, P. S. J. **Extremely broadband single-shot cross-correlation frequency-resolved optical gating using a transient grating as gate and dispersive element**. *Review of Scientific Instruments 88*, 073106 (2017).

[182] ZELLER, J., JASAPARA, J., RUDOLPH, W., AND SHEIK-BAHAE, M. **Spectro-temporal characterization of a femtosecond white-light continuum by transient-grating diffraction**. *Optics Communications 185*, 1-3 (2000), 133–137.

[183] LI, H., YAN-QIANG, Y., YING-HUI, W., ZHI-REN, Z., AND WEN-HUI, S. **Diffraction of white-light supercontinuum by femtosecond laser-induced transient grating in carbon bisulfide**. *Chinese Physics B 19*, 104207 (2010).

[184] DIELS, J.-C., AND RUDOLPH, W. **Ultrashort Laser Pulse Phenomena**. Elsevier, 2006, ch. Light-Matter Interaction, p. 193.

[185] BOYD, R. **Chapter 4: The Intensity-Dependent Refractive Index**. Academic Press, 2008.

[186] BOUDEBS, G., AND FEDUS, K. **Absolute measurement of the nonlinear refractive indices of reference materials**. *Journal of Applied Physics 105*, 103106 (2009).

[187] CIMEK, J., LIAROS, N., COURIS, S., STĘPIEŃ, R., KLIMCZAK, M., AND BUCZYŃSKI, R. **Experimental investigation of the nonlinear refractive index of various soft glasses dedicated for development of nonlinear photonic crystal fibers**. *Optical Materials Express 7*, 10 (2017), 3471–3483.

[188] FRESNEL, A. **Oeuvres complètes d'Augustin Fresnel**. Imprimerie Impériale, 1866, ch. Théorie de la Lumière - Première Section - Notes diverses sur la Diffraction, p. 186.

[189] BRAGG, W. H., AND BRAGG, W. L. **The reflection of X-rays by crystals**. *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences 88*, 605 (1913), 428–438.

[190] MOHARAM, M. G., AND YOUNG, L. **Criterion for Bragg and Raman-Nath diffraction regimes**. *Applied Optics 17*, 11 (1978), 1757–1759.

[191] KOGELNIK, H. **Coupled wave theory for thick hologram gratings**. *Bell System Technical Journal 48*, 9 (1969), 2909–2947.

[192] BOYD, R. **Nonlinear Optics, 3rd Edition**. Academic Press, 2008.

[193] LORIOT, V., HERTZ, E., FAUCHER, O., AND LAVOREL, B. **Measurement of high order Kerr refractive index of major air components**. *Optics Express 17*, 16 (2009), 13429–13434.

[194] QUERRY, M. R. **Optical constants**. Tech. rep., Missouri Univ-Kansas City, 1985.

[195] TIKHONRAVOV, A. V., TRUBETSKOV, M. K., AND AMOTCHKINA, T. V. **Investigation of the effect of accumulation of thickness errors in optical coating production by broadband optical monitoring**. *Applied Optics 45*, 27 (2006), 7026–7034.

[196] SIDICK, E., DIENES, A., AND KNOESEN, A. **Ultrashort-pulse second-harmonic generation II non-transform-limited fundamental pulses**. *Journal of the Optical Society of America B 12*, 9 (1995), 1713–1722.

[197] OSVAY, K., KOVACS, A., HEINER, Z., KURDI, G., KLEBNICZKI, J., AND CSATARI, M. **Angular dispersion and temporal change of femtosecond pulses from misaligned pulse compressors**. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics 10*, 1 (2004), 213–220.

[198] DRUON, F., HANNA, M., LUCAS-LECLIN, G., ZAOUTER, Y., PAPADOPOULOS, D., AND GEORGES, P. **Simple and general method to calculate the dispersion properties of complex and aberrated stretchers-compressors**. *Journal of the Optical Society of America B 25*, 5 (2008), 754–762.

[199] YAKOVLEV, I. V. **Alignment of chirped-pulse compressor**. *Quantum Electronics 42*, 11 (2012), 996–1001.

[200] WEBB, B., GUARDALBEN, M. J., DORRER, C., BUCHT, S., AND BROMAGE, J. **Simulation of grating compressor misalignment tolerances and mitigation strategies for chirped-pulse–amplification systems of varying bandwidths and beam sizes**. *Applied Optics 58*, 2 (2019), 234–243.

[201] HEBLING, J. **Derivation of the pulse front tilt caused by angular dispersion**. *Optical and Quantum Electronics 28*, 12 (1996), 1759–1763.

[202] MAXWELL, J. C. **Viii. a dynamical theory of the electromagnetic field**. *Philosophical transactions of the Royal Society of London*, 155 (1865), 459–512.

[203] CHIMIER, B., UTÉZA, O., SANNER, N., SENTIS, M., ITINA, T., LASSONDE, P., LÉGARÉ, F., VIDAL, F., AND KIEFFER, J. C. **Damage and ablation thresholds of fused-silica in femtosecond regime**. *Physical Review B 84*, 094104 (2011).

[204] TOCHIO, T., SAKAKURA, M., SHIMOTSUMA, Y., NISHI, M., HIRAO, K., AND MIURA, K. **Transient stress imaging after irradiation with a focused femtosecond laser pulse inside a single crystal**. *Japanese Journal of Applied Physics 51*, 126602 (2012).

[205] BROMLEY, K., MONAHAN, M. A., BRYANT, J. F., AND THOMPSON, B. J. **Complex spatial filtering by holographic Fourier subtraction**. *Applied Physics Letters 14*, 2 (1969), 67–70.

[206] ZEHNDER, L. **Ein neuer Interferenzrefraktor**. *Zeitschrift für Instrumentenkunde 11* (1891), 275–285.

[207] MACH, L. **Ueber einen Interferenzrefraktor**. *Zeitschrift für Instrumentenkunde 12*, 3 (1892), 89–93.

[208] BABIN, A., KISELEV, A., KULAGIN, D., PRAVDENKO, K., AND STEPANOV, A. **Shock-wave generation upon axicon focusing of femtosecond laser radiation in transparent dielectrics**. *Journal of Experimental and Theoretical Physics 80*, 5 (2004), 298–302.

[209] MAJOR, A., YOSHINO, F., NIKOLAKAKOS, I., AITCHISON, J. S., AND SMITH, P. W. E. **Dispersion of the nonlinear refractive index in sapphire**. *Optics Letters 29*, 6 (2004), 602–604.

[210] GAMALY, E., AND RODE, A. **Physics of ultra-short laser interaction with matter: From phonon excitation to ultimate transformations**. *Progress in Quantum Electronics 37*, 5 (2013), 215–323.

[211] MARTIN, P., GUIZARD, S., DAGUZAN, P., PETITE, G., D'OLIVEIRA, P., MEYNADIER, P., AND PERDRIX, M. **Subpicosecond study of carrier trapping dynamics in wide-band-gap crystals**. *Physical Review B 55*, 9 (1997), 5799–5810.

[212] GROJO, D., GERTSVOLF, M., LEI, S., BARILLOT, T., RAYNER, D. M., AND CORKUM, P. B. **Exciton-seeded multiphoton ionization in bulk SiO2**. *Physical Review B 81*, 212301 (2010).

[213] LIDE, D. R. **CRC handbook of chemistry and physics**, vol. 85. CRC press, 2004.

[214] WINEY, J. M., GUPTA, Y. M., AND HARE, D. E. **R-axis sound speed and elastic properties of sapphire single crystals**. *Journal of Applied Physics 90*, 6 (2001), 3109–3111.

[215] MAYER, W. G. **Determination of the elastic constants of sapphire by different ultrasonic methods**. PhD thesis, Michigan State University, 1958.

[216] MAO, X., AND RUSSO, R. E. **Invited paper observation of plasma shielding by measuring transmitted and reflected laser pulse temporal profiles**. *Applied Physics A 64*, 1 (1996), 1–6.

[217] HAMMER, D. X., JANSEN, E. D., FRENZ, M., NOOJIN, G. D., THOMAS, R. J., NOACK, J., VOGEL, A., ROCKWELL, B. A., AND WELCH, A. J. **Shielding properties of laser-induced breakdown in water for pulse durations from 5 ns to 125 fs**. *Applied Optics 36*, 22 (1997), 5630–5640.

[218] KIELICH, S. **Optical second-harmonic generation by electrically polarized isotropic media**. *IEEE Journal of Quantum Electronics 5*, 12 (1969), 562–568.

[219] GOVORKOV, S. V., EMEL'YANOV, V. I., KOROTEEV, N. I., PETROV, G. I., SHUMAY, I. L., AND YAKOVLEV, V. V. **Inhomogeneous deformation of silicon surface layers probed by second-harmonic generation in reflection**. *Journal of the Optical Society of America B 6*, 6 (1989), 1117–1124.

[220] TERHUNE, R. W., MAKER, P. D., AND SAVAGE, C. M. **Optical harmonic generation in calcite**. *Physical Review Letters 8*, 10 (1962), 404–406.

[221] NAPPA, J., REVILLOD, G., RUSSIER-ANTOINE, I., BENICHOU, E., JONIN, C., AND BREVET, P. F. **Electric dipole origin of the second harmonic generation of small metallic particles**. *Physical Review B 71*, 165407 (2005).

[222] EXTERMANN, J., BONACINA, L., COURVOISIER, F., KISELEV, D., MUGNIER, Y., DANTEC, R. L., GALEZ, C., AND WOLF, J.-P. **Nano-FROG: Frequency resolved optical gating by a nanometric object**. *Optics Express 16*, 14 (2008), 10405–10411.

[223] SHEN, Y. R. **The principles of nonlinear optics**. Wiley-Interscience, 1984, p. 543.

[224] CARUSO, A., ANGELIS, A. D., GATTI, G., GRATTON, R., AND MARTELLUCCI, S. **Second-harmonic generation in laser produced plasmas**. *Physics Letters A 33*, 1 (1970), 29–30.

[225] SHEN, Y. R. **The principles of nonlinear optics**. Wiley-Interscience, 1984.

[226] KAUR, M., AGARWAL, P. C., AND KAUR, S. **Laser second-harmonic generation from an overdense plasma slab**. *Laser and Particle Beams 35*, 3 (2017), 379–385.

[227] KOSAREVA, O. G., KANDIDOV, V. P., BRODEUR, A., CHIEN, C. Y., AND CHIN, S. L. **Conical emission from laser–plasma interactions in the filamentation of powerful ultrashort laser pulses in air**. *Optics Letters 22*, 17 (1997), 1332–1334.

[228] KOMPANETS, V. O., CHEKALIN, S. V., KOSAREVA, O. G., GRIGOR'EVSKII, A. V., AND KANDIDOV, V. P. **Conical emission of a femtosecond laser pulse focused by an axicon into a K 108 glass**. *Quantum Electronics 36*, 9 (2006), 821–824.

[229] MAIOLI, P., SALAMÉ, R., LASCOUX, N., SALMON, E., BÉJOT, P., KASPARIAN, J., AND WOLF, J.-P. **Ultraviolet-visible conical emission by multiple laser filaments**. *Optics Express 17*, 6 (2009), 4726–4731.

[230] BÉJOT, P., AND KASPARIAN, J. **Conical emission from laser filaments and higher-order Kerr effect in air**. *Optics Letters 36*, 24 (2011), 4812–4814.

[231] GROSSE, N. B., HECKMANN, J., AND WOGGON, U. **Nonlinear plasmon-photon interaction resolved by k-space spectroscopy**. *Physical Review Letters 108*, 136802 (2012).

[232] **The worldwide market for lasers: Review and forecast.** Tech. rep., Strategies Unlimited, 2019.

[233] CHENG, J., SHENG LIU, C., SHANG, S., LIU, D., PERRIE, W., DEARDEN, G., AND WATKINS, K. **A review of ultrafast laser materials micromachining**. *Optics & Laser Technology 46* (2013), 88–102.

[234] SUGIOKA, K., AND CHENG, Y. **Ultrafast lasers-reliable tools for advanced materials processing**. *Light: Science & Applications 3*, 4 (2014), e149.

[235] RUSSBUELDT, P., WEITENBERG, J., SCHULTE, J., MEYER, R., MEINHARDT, C., HOFFMANN, H. D., AND POPRAWE, R. **Scalable 30-fs laser source with 530-W average power**. *Optics Letters 44*, 21 (2019), 5222–5225.

[236] WATANABE, W., LI, Y., AND ITOH, K. **Ultrafast laser micro-processing of transparent material**. *Optics & Laser Technology 78* (2016), 52–61.

[237] MALINAUSKAS, M., ŽUKAUSKAS, A., HASEGAWA, S., HAYASAKI, Y., MIZEIKIS, V., BUIVIDAS, R., AND JUODKAZIS, S. **Ultrafast laser processing of materials: from science to industry**. *Light: Science & Applications 5*, 8 (2016), e16133.

[238] LAWN, B. **Fracture of brittle solids**. Cambridge university press, 1993.

[239] ANDERSON, T. L. **Fracture mechanics: fundamentals and applications**. CRC press, 2005.

[240] CRAWFORD, T., BOROWIEC, A., AND HAUGEN, H. **Femtosecond laser micromachining of grooves in silicon with 800 nm pulses**. *Applied Physics A 80*, 8 (2004), 1717–1724.

[241] FORNAROLI, C., HOLTKAMP, J., AND GILLNER, A. **Dicing of thin Si wafers with a picosecond laser ablation process**. *Physics Procedia 41* (2013), 603–609.

[242] WOOLHOUSE, G. R., HUGGINS, H. A., AND COLLINS, D. W. **Patent: Method of cleaving semiconductor diode laser wafers**, 1978.

[243] VANAGAS, E., YE, J.-Y., LI, M., MIWA, M., JUODKAZIS, S., AND MISAWA, M. **Analysis of stress induced by a three-dimensional recording in glass**. *Applied Physics A 81* (2005), 725–727.

[244] CHAMPION, A., AND BELLOUARD, Y. **Direct volume variation measurements in fused silica specimens exposed to femtosecond laser**. *Optical Materials Express 2*, 6 (2012), 789–798.

[245] CHAMPION, A., BERESNA, M., KAZANSKY, P., AND BELLOUARD, Y. **Stress distribution around femtosecond laser affected zones: effect of nanogratings orientation**. *Optics Express 21*, 12 (2013), 24942–24951.

[246] SAKAKURA, M., ISHIGURO, Y., FUKUDA, N., SHIMOTSUMA, Y., AND MIURA, K. **Modulation of laser induced-cracks inside a LiF single crystal by fs laser irradiation at multiple points**. *Optics Express 21*, 22 (2013), 26921–26928.

[247] KUMAGAI, M., UCHIYAMA, N., OHMURA, E., SUGIURA, R., ATSUMI, K., AND FUKUMITSU, K. **Advanced dicing technology for semiconductor wafer—stealth dicing**. *IEEE Transactions on Semiconductor Manufacturing 20*, 3 (2007), 259–265.

[248] OHMURA, E., KUMAGAI, M., NAKANO, M., KUNO, K., FUKUMITSU, K., AND MORITA, H. **Analysis of processing mechanism in stealth dicing of ultra thin silicon wafer**. *Journal of Advanced Mechanical Design, Systems, and Manufacturing 2*, 4 (2008), 540–549.

[249] AHMED, F., AHSAN, M. S., LEE, M. S., AND JUN, M. B. G. **Near-field modification of femtosecond laser beam to enhance single-shot pulse filamentation in glass medium**. *Applied Physics A 114*, 4 (2013), 1161–1165.

[250] MISHCHIK, K., LEGER, C. J., CAULIER, O. D., SKUPIN, S., CHIMIER, B., HÖNNINGER, C., KLING, R., DUCHATEAU, G., AND LOPEZ, J. **Ultrashort pulse laser cutting of glass by controlled fracture propagation**. *Journal of Laser Micro/Nanoengineering 11*, 1 (2016), 66–70.

[251] LOPEZ, J., MISHCHIK, K., CHASSAGNE, B., JAVAUX-LEGER, C., HÖNNINGER, C., MOTTAY, E., AND KLING, R. **Glass cutting using ultrashort pulsed Bessel beams**. In *International Congress on Applications of Lasers & Electro-Optics* (2015), Laser Institute of America.

[252] YADAV, A., KBASHI, H., KOLPAKOV, S., GORDON, N., ZHOU, K., AND RAFAILOV, E. U. **Stealth dicing of sapphire wafers with near infra-red femtosecond pulses**. *Applied Physics A 123*, 369 (2017).

[253] SCHAFFER, C., GARCIA, J., AND MAZUR, E. **Bulk heating of transparent materials using a high-repetition-rate femtosecond laser**. *Applied Physics A 76* (2003), 351–354.

[254] EATON, S. M., ZHANG, H., HERMAN, P. R., YOSHINO, F., SHAH, L., BOVATSEK, J., AND ARAI., A. Y. **Heat accumulation effects in femtosecond laserwritten waveguides with variable repetition rate**. *Optics Express 13*, 12 (2005), 4708–4716.

[255] STRIGIN, M. B., AND CHUDINOV, A. N. **Laser processing of glass by picosecond pulses**. *Quantum Electronics 24*, 8 (1994), 732–735.

[256] STRIGIN, M., AND CHUDINOV, A. **Cutting of glass by picosecond laser radiation**. *Optics Communications 106*, 4-6 (1994), 223–226.

[257] MATHIS, A., COURVOISIER, F., FROEHLY, L., FURFARO, L., JACQUOT, M., LACOURT, P. A., AND DUDLEY, J. M. **Micromachining along a curve: Femtosecond laser micromachining of curved profiles in diamond and silicon using accelerating beams**. *Applied Physics Letters 101*, 071110 (2012).

[258] NISAR, S., LI, L., AND SHEIKH, M. A. **Laser glass cutting techniques—a review**. *Journal of Laser Applications 25*, 042010 (2013).

[259] LIVINGSTONE, S. A. J., CHUA, K. L., AND BLACK, I. **Experimental development of a machining database for the CO2 laser cutting of ceramic tile**. *Journal of Laser Applications 9*, 5 (1997), 233–241.

[260] HERMANNS, C. **Laser cutting of glass**. In *Inorganic Optical Materials II* (2000), A. J. M. III and E. G. Arthurs, Eds., SPIE.

[261] KANG, H.-S., HONG, S.-K., OH, S.-C., CHOI, J.-Y., AND SONG, M.-G. **Cutting glass by laser**. In *Second International Symposium on Laser Precision Microfabrication* (2002), I. Miyamoto, Y. F. Lu, K. Sugioka, and J. J. Dubowski, Eds., SPIE.

[262] BHUYAN, M. K., VELPULA, P. K., COLOMBIER, J. P., OLIVIER, T., FAURE, N., AND STOIAN, R. **Single-shot high aspect ratio bulk nanostructuring of fused silica using chirpcontrolled ultrafast laser Bessel beams**. *Applied Physics Letters 104*, 021107 (2014).

[263] VELPULA, P. K., BHUYAN, M. K., COURVOISIER, F., ZHANG, H., COLOMBIER, J. P., AND STOIAN, R. **Spatio-temporal dynamics in nondiffractive Bessel ultrafast laser nanoscale volume structuring**. *Laser & Photonics Reviews 10*, 2 (2016), 230–244.

[264] COLLINS, A. R., AND O'CONNOR, G. M. **Mechanically inspired laser scribing of thin flexible glass**. *Optics Letters 40*, 20 (2015), 4811–4814.

[265] DUDUTIS, J., GEČYS, P., AND RAČIUKAITIS, G. **Non-ideal axicon-generated Bessel beam application for intra-volume glass modification**. *Optics Express 24*, 25 (2016), 28433–28443.

[266] YOUNG, W. C., AND BUDYNAS, R. G. **Roark's formulas for stress and strain**. No. 7th edition. McGraw-Hill New York, 2002.

[267] ANDERSON, T. L. **Fracture mechanics: fundamentals and applications**. CRC press, 2005, pp. 341–342.

[268] SHAH, R., AND KOBAYASHI, A. **Stress intensity factors for an elliptical crack approaching the surface of a semi-infinite solid**. *International Journal of Fracture 9*, 2 (1973), 133–146.

[269] SHAH, R., AND KOBAYASHI, A. **Elliptical crack in a finite-thickness plate subjected to tensile and bending loading**. *Journal of Pressure Vessel Technology 96*, 1 (1974), 47–54.

[270] NISHIOKA, T., AND ATLURI, S. **Analytical solution for embedded elliptical cracks, and finite element alternating method for elliptical surface cracks, subjected to arbitrary loadings**. *Engineering Fracture Mechanics 17*, 3 (1983), 247–268.

[271] PILKEY, W. D. **Formulas for stress, strain, and structural matrices**, vol. 107. Wiley New York, 1994.

[272] DELLIOU, P. L., AND BARTHELET, B. **New stress intensity factor solutions for an elliptical crack in a plate**. *Nuclear Engineering and Design 237*, 12-13 (2007), 1395–1405.

[273] LUBARDA, V. A. **On the circumferential shear stress around circular and elliptical holes**. *Archive of Applied Mechanics 85*, 2 (2014), 223–235.

[274] ZHANG, Y. **Analytical expression for the diffraction field of an axicon using the ray-tracing and interference method**. *Applied Physics B 90*, 1 (2008), 93–96.

[275] DUDUTIS, J., STONYS, R., RAČIUKAITIS, G., AND GEČYS, P. **Aberration-controlled Bessel beam processing of glass**. *Optics Express 26*, 3 (2018), 3627–3637.

[276] WEIBULL, W. **A statistical distribution function of wide applicability**. *Journal of Applied Mechanics and Technical Physics 18*, 3 (1951), 293–297.

[277] MIRAU, A. **Le Rugometre, appareil pour la mesure du fini des surfaces**. *Annales Francaises de Chronometrie 21* (1951), 25–32.

[278] DUDUTIS, J., STONYS, R., RAČIUKAITIS, G., AND GEČYS, P. **Generation of asymmetrical Bessel-like laser beams for glass dicing**. In *Laser Beam Shaping XIX* (2019), A. Dudley and A. V. Laskin, Eds., SPIE.

[279] GUTIÉRREZ-VEGA, J., ITURBE-CASTILLO, M., RAMÍREZ, G., TEPICHÍN, E., RODRÍGUEZ-DAGNINO, R., CHÁVEZ-CERDA, S., AND NEW, G. **Experimental demonstration of optical Mathieu beams**. *Optics Communications 195*, 1-4 (2001), 35–40.

[280] GUTIÉRREZ-VEGA, J. C., AND BANDRES, M. A. **Helmholtz-Gauss waves**. *Journal of the Optical Society of America A 22*, 2 (2005), 289–298.

[281] REN, Z., HU, H., AND PENG, B. **Generation of Mathieu beams using the method of 'combined axicon and amplitude modulation'**. *Optics Communications 426* (2018), 226–230.

[282] VOSYLIUS, V., AND ORLOV, S. **Vector focus wave modes with elliptic cross-section**. *Journal of Laser Micro/Nanoengineering 14*, 1 (2019), 25–30.

[283] GRABUSOVAS, A., VOSYLIUS, V., GERTUS, T., AND ORLOV, S. **Vector Mathieu beam profile engineering for laser material processing applications**. *Procedia CIRP 74* (2018), 598–601.

[284] ORLOV, S., ŠLEVAS, P., VOSYLIUS, V., GOTOVSKI, P., ULČINAS, O., AND GERTUS, T. **Generation of vector Mathieu beams using geometrical phase elements and their application to laser micro-processing**. In *Conference on Lasers and Electro-Optics Europe and European Quantum Electronics Conference* (2019), Optical Society of America, pp. cm–1–5.

[285] MEYER, R., FROEHLY, L., GIUST, R., HOYO, J. D., FURFARO, L., BILLET, C., AND COURVOISIER, F. **Extremely high-aspect-ratio ultrafast Bessel beam generation and stealth dicing of multi-millimeter thick glass**. *Applied Physics Letters 114*, 201105 (2019).

[286] MISHCHIK, K., BEUTON, R., CAULIER, O. D., SKUPIN, S., CHIMIER, B., DUCHATEAU, G., CHASSAGNE, B., KLING, R., HÖNNINGER, C., MOTTAY, E., AND LOPEZ, J. **Improved laser glass cutting by spatio-temporal control of energy deposition using bursts of femtosecond pulses**. *Optics Express 25*, 26 (2017), 33271–33282.

[287] MEYER, R., GIUST, R., JACQUOT, M., DUDLEY, J. M., AND COURVOISIER, F. **Submicron-quality cleaving of glass with elliptical ultrafast Bessel beams**. *Applied Physics Letters 111*, 231108 (2017).

[288] JENNE, M., FLAMM, D., OUAJ, T., HELLSTERN, J., KLEINER, J., GROSSMANN, D., KOSCHIG, M., KAISER, M., KUMKAR, M., AND NOLTE, S. **High-quality tailored-edge cleaving using aberration-corrected Bessel-like beams**. *Optics Letters 43*, 13 (2018), 3164–3167.

[289] DUDUTIS, J., STONYS, R., RAČIUKAITIS, G., AND GEČYS, P. **Glass dicing with elliptical Bessel beam**. *Optics & Laser Technology 111* (2019), 331–337.

[290] MITRA, S., CHANAL, M., CLADY, R., MOUSKEFTARAS, A., AND GROJO, D. **Millijoule femtosecond micro-Bessel beams for ultra-high aspect ratio machining**. *Applied Optics 54*, 24 (2015), 7358–7365.

[291] ZAHEDPOUR, S., WAHLSTRAND, J. K., AND MILCHBERG, H. M. **Measurement of the nonlinear refractive index of air constituents at mid-infrared wavelengths**. *Optics Letters 40*, 24 (2015), 5794–5797.

[292] CHEBBI, B., MINKO, S., AL-AKWAA, N., AND GOLUB, I. **Remote control of extended depth of field focusing**. *Optics Communications 283*, 9 (2010), 1678–1683.

[293] BRZOBOHATÝ, O., CIŽMÁR, T., AND ZEMÁNEK, P. **High quality quasi-Bessel beam generated by round-tip axicon**. *Optics Express 16*, 17 (2008), 12688–12700.

[294] E23-88, A. **Standard Test Methods for Notched Bar Impact Testing of Metallic Materials**. American Society for Testing and Materials, 1988, pp. 198–213.

[295] FEUER, A., THOMAS, J.-U., FREITAG, C., WEBER, R., AND GRAF, T. **Single-pass laser separation of 8 mm thick glass with a millijoule picosecond pulsed Gaussian–Bessel beam**. *Applied Physics A 125*, 332 (2019).

[296] MELLADO, V. H., HACYAN, S., AND JÁUREGUI, R. **Trapping and acceleration of charged particles in Bessel beams**. *Laser and Particle Beams 24*, 4 (2006), 559–566.

[297] ALTUCCI, C., BRUZZESE, R., D'ANTUONI, D., DE LISIO, C., AND SOLIMENO, S. **Harmonic generation in gases by use of Bessel–Gauss laser beams**. *Journal of the Optical Society of America B 17*, 1 (2000), 34–42.

[298] DAO, L. V., DINH, K. B., AND HANNAFORD, P. **Generation of extreme ultraviolet radiation with a Bessel–Gaussian beam**. *Applied Physics Letters 95*, 131114 (2009).

[299] ESSER, D., REZAEI, S., LI, J., HERMAN, P. R., AND GOTTMANN, J. **Time dynamics of burst-train filamentation assisted femtosecond laser machining in glasses**. *Optics Express 19*, 25 (2011), 25632–25642.

[300] GATTASS, R. R., CERAMI, L. R., AND MAZUR, E. **Micromachining of bulk glass with bursts of femtosecond laser pulses at variable repetition rates**. *Optics Express 14*, 12 (2006), 5279–5284.

[301] LI, J., ERTORER, E., AND HERMAN, P. R. **Ultrafast laser burst-train filamentation for non-contact scribing of optical glasses**. *Optics Express 27*, 18 (2019), 25078–25090.

[302] MEYER, R., JACQUOT, M., GIUST, R., SAFIOUI, J., RAPP, L., FURFARO, L., LACOURT, P.-A., DUDLEY, J. M., AND COURVOISIER, F. **Single-shot ultrafast laser processing of high-aspect-ratio nanochannels using elliptical Bessel beams**. *Optics Letters 42*, 21 (2017), 4307–4310.

Document réalisé avec LaTeX et :
le style LaTeX pour Thèse de Doctorat créé par S. Galland — http://www.multiagent.fr/ThesisStyle
la collection de paquets `tex-upmethodology` — http://www.arakhne.org/tex-upmethodology/