

## Contexte

The project objective is to master femtosecond (fs) laser – glass interaction in the view to achieve applications from a newly appearing technology i.e. 3D direct shaping of optical properties in silica-based glasses by means of femtosecond laser. The interaction of this kind of laser with silica-based glasses is such that laser-induced refractive index change can be as large as  $2.2 \cdot 10^{-2}$  (the most achievable at this date in silica by any available method), the linear birefringence can be as large as 80% (a unique feature), the fs-waveguides attenuation can be as low as a 0.1dB/cm (can be improved) but the writing speed can be as large as 1 cm/s! And, on top of that, this is made locally in 3D due to high non-linear interaction. These features lead to think to tremendous progress in photonics with such a flexible tool. Especially, we think that we will be able to show the possibility for achieving adapted optical small components to transform any beam characterized by a set of parameters in its section for each point like the wave vector, the polarisation vector and the intensity, into any other one having different set of parameters.

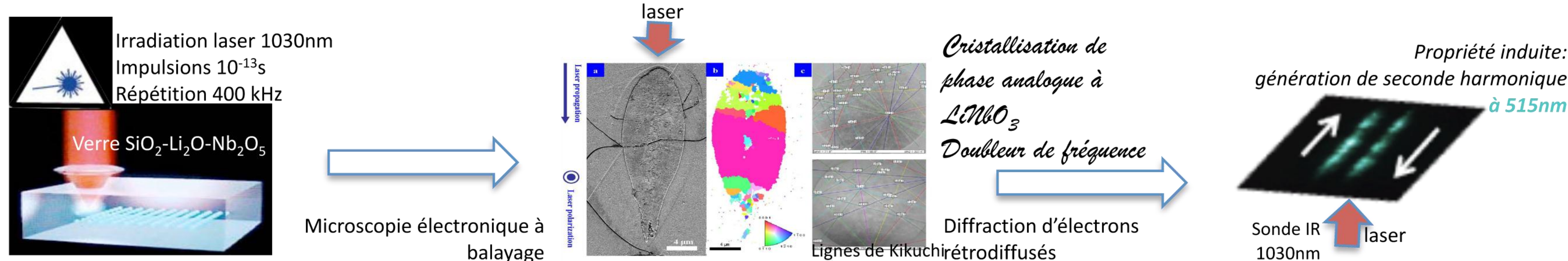
## 4 Résultats marquants

### 1) Photoprécipitation de nanocristaux par laser femtoseconde et orientation : vers une nouvelle science des matériaux par laser : une réalisation en avance sur le programme.

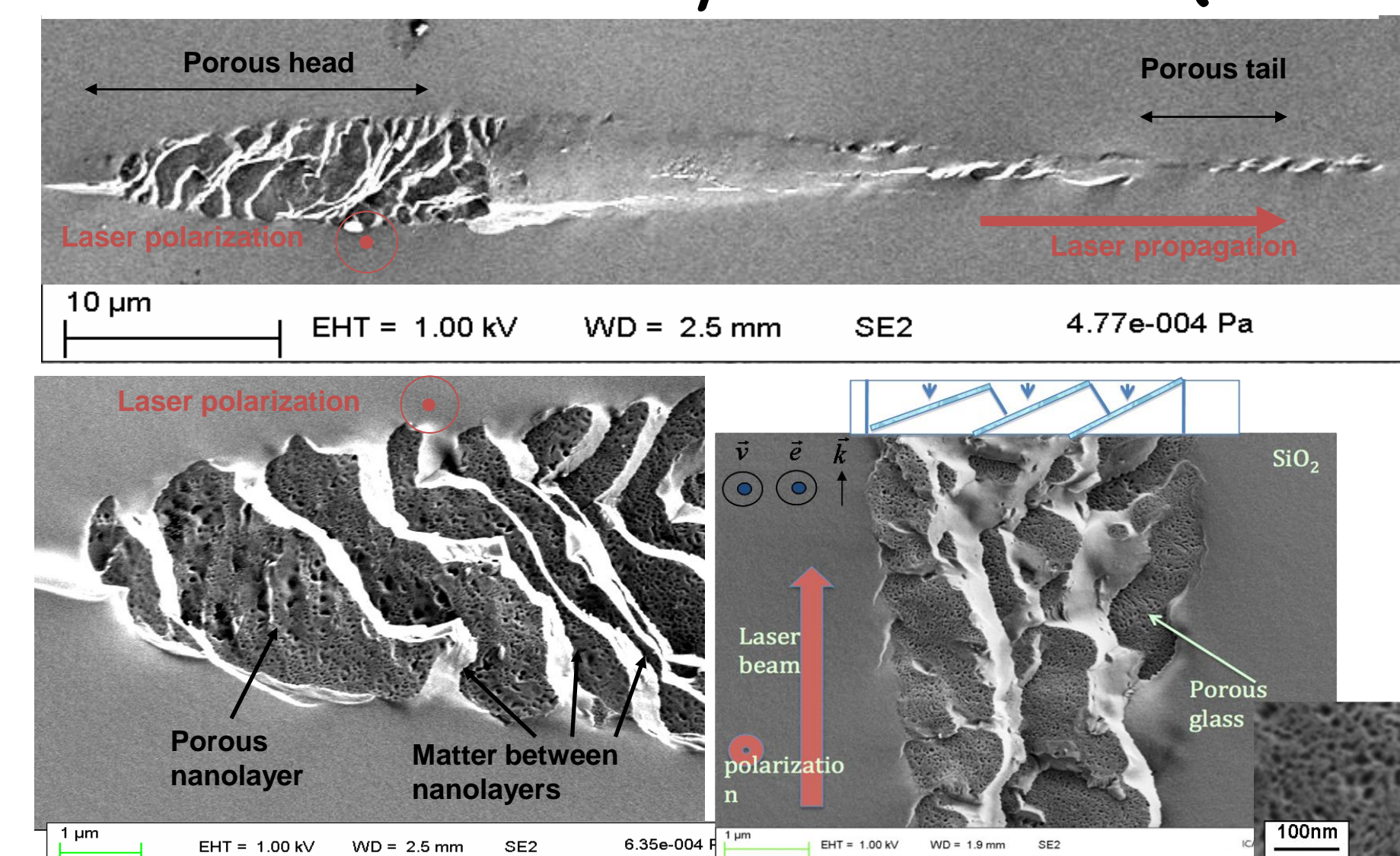
Il a déjà été montré qu'il est possible en appliquant le laser femtoseconde dans des verres de composition appropriée de précipiter des cristaux de taille micrométriques et même de taille nanométriques, mais obtenir leur orientation était un sujet beaucoup plus risqué qui peut cependant présenter des retours considérables permettant de produire localement des propriétés non-linéaires dans des guides optiques avec des biréfringences, par ailleurs, maîtrisées. C'est la possibilité d'élaborer de véritables cartes-mères tout optique en 3D. Cette idée a été soutenue, pour ses débuts, par la Commission Européenne (FP7-PEOPLE-EIF Femtonanoproject)

Deux thèses en cotutelle (l'une en collaboration avec l'Université de Shanghai (Key Laboratory for Ultrafine Materials, School of Materials Science and Engineering, East China University of Science and Technology et l'autre avec l'Université de Wuhan), arrivent bientôt à terme sur ce sujet (l'une sur le système  $\text{LiNbO}_3\text{-SiO}_2$ , l'autre dans le système  $\text{SrTiO}_3\text{-SiO}_2$ ). Une troisième s'achève sur la simulation des champs de distribution de température et de gradient. Grâce à ces études, nous avons pu obtenir, fin 2010, un « fil » quasi monocristallin d'une phase de même symétrie que  $\text{LiNbO}_3$  dans l'une des matrices vitreuses. Son orientation en direction et en orientation a été prouvée par la propriété de génération de seconde harmonique. Ce fil a été réalisé au cœur du verre sans assistance thermique, uniquement en maîtrisant les paramètres du laser. **C'est une percée. Nous avons déposé deux brevets sur cette méthode en collaboration avec nos collègues chinois. Par ailleurs, nous avons écrit un chapitre d'ouvrage pour NovaPublisher réunissant les résultats sur la création de cristaux non-linéaires orientés dans les verres.**

### Cristallisation photoinduite par laser femtoseconde dans les verres



### Une déstabilisation ultra-rapide de la silice (en 160 fs !)



### 2) Excitation électronique par avalanche, première fois mis en évidence dans un isolant : la silice

**Nous avons pu pour la première fois mettre en évidence ce phénomène d'avalanche électronique induite par laser, en mesurant la densité d'excitation produite par une séquence de deux impulsions.** La première impulsion excite les porteurs, que la deuxième va « chauffer » : on observe dans certaines conditions, une augmentation de la densité d'excitation atteinte après l'impulsion de chauffage, signature de l'effet d'avalanche. Plus important, nous avons pu montrer que ce mécanisme d'avalanche n'est pas universel : il est observé dans  $\text{SiO}_2$ , mais pas dans d'autres oxydes tels que  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ou  $\text{MgO}$ . D'autre part, ce processus est observé dans des conditions particulières, et nous avons également pu montrer que le claquage optique peut se produire à des éclaircissements ou aucun signe d'avalanche n'est mesuré : il n'y a donc pas de lien univoque entre ces deux mécanismes physiques.

### 3) Mise en évidence d'effet asymétrique d'écriture dans la direction perpendiculaire au plan du compresseur du laser et le

écriture de droite à gauche ou de gauche à droite avec un laser fs pour un certain domaine de paramètres, ce n'est pas pareil. Cet effet avait déjà été mis en évidence par nous-mêmes nos collègues de Southampton. De cette observation, une interprétation faisant intervenir le compresseur d'impulsion du laser expliquait un effet dans le plan horizontal et une absence dans le plan vertical. Nous montrons ici dans un verre  $32.5\text{Li}_2\text{O}-27.5\text{Nb}_2\text{O}_5-40\text{SiO}_2$  que ce n'est pas totalement vrai. L'asymétrie disparaît seulement quand la polarisation et la direction d'écriture sont verticales. La théorie est donc à revoir.

### 4) Une déstabilisation ultra-rapide de la silice (en 160 fs !)

Les dommages créés dans la silice dans le domaine d'énergie compris entre 0,04 et 0,1  $\mu\text{J}$  pour  $f=150$  kHz sont tels qu'une forte biréfringence est observée. L'amplitude de cette biréfringence dépend du sens d'écriture. Elle est formée par un réseau de nanoplans espacés de l'ordre de 200 nm et de 20 nm d'épaisseur. Cette découverte a été faite, en premier, par l'un de nos collaborateurs (Programme Hubert Curien) de l'ORC à Southampton. Il restait à déterminer la nature de ces nanoplans. Certains y voyaient des fractures, d'autres des déplétions d'oxygène. Nous avons élucidé cette question en analysant les nanoplans avec un SEM à canon à effet de champ. Ils sont formés par une déstabilisation de la silice due à un « chauffage » au dessus de la température d'équilibre. La silice s'est alors réduite et a dégagé des bulles d'oxygène. Suivant la densité de bulles et compte tenu des forces de cisaillement, par ailleurs, présentes, cela peut produire des fracturations du matériau. La mise en évidence de la structure poreuse de ces nanoplans par une méthode que nous avons mis au point est une avancée importante sur le sujet.

## Production scientifique (publications, brevets)

- Chaxing Fan, Bertrand Pommellec, Matthieu Lancry, Xuan He, Huidan Zeng, Abdel Erraji-Chahid, Qiming. Liu, and Guorong Chen, "3D photo-precipitation of oriented  $\text{LiNbO}_3$ -like crystals in silica based glass with femtosecond laser irradiation," Accepted in Opt Lett (2012)
- J. Canning, M. Lancry, K. Cook, A. Weickman, F. Brisset, and B. Pommellec, "Anatomy of a femtosecond laser processed silica waveguide [Invited]," Opt. Mater. Express 1, 998-1008 (2011)
- B. Pommellec, M. Lancry, A. Chahid-Erraji, and P. G. Kazansky, "Modification thresholds in femtosecond laser processing of pure silica: review of dependencies on laser parameters [Invited]," Opt. Mater. Express 1, 766-782 (2011)
- M. Lancry, B. Pommellec, A. Chahid-Erraji, M. Beresna, and P. G. Kazansky, "Dependence of the femtosecond laser refractive index change thresholds on the chemical composition of doped-silica glasses," Opt. Mater. Express 1, 711-723 (2011)
- H. Zeng, B. Pommellec, C. Fan, G. Chen, A. Erraji-Chahid and M. Lancry, "Preparation of Glass-Ceramics with Oriented Nonlinear Crystals: A Review," Advances in Materials Science Research. Volume 12, Nova Science Publishers (2012). [https://www.novapublishers.com/catalog/product\\_info.php?products\\_id=28327](https://www.novapublishers.com/catalog/product_info.php?products_id=28327)
- C. FAN B. POUHELLEC, H. ZENG, R. DESMARCHELIER, B. BOURGUIGNON, G. CHEN, M. LANCRY., "Gold Nanoparticles Reshaped by Ultrafast Laser Irradiation Inside a Silica-Based Glass, Studied Through Optical Properties.," The Journal of Physical Chemistry C. 116, 2647-2655. 2012)
- M. Lancry, N. Grothoff, S. Guizard, B. Pommellec and J. Canning, "Time-resolved plasma density measurements in silica-based glasses exposed to IR femtosecond laser," Physical Review B 84 (24), 245103 (2011)
- M. Lancry, N. Grothoff, S. Guizard, W. Yang, B. Pommellec, P.G. Kazansky, and J. Canning, "Femtosecond laser processing in wet and dry silica glass," Journal of Non-Crystalline Solids 355 (18-21), 1057-1061 (2009)
- A. Mouskeftaras, St.Guizard, N. Fedorov, S. Klimentov, "Mechanisms of Femtosecond Laser Ablation of Dielectrics Revealed by Double Pump - Probe Experiment", Applied Phys.A (2012)
- S. Chouli, E. Freysz, Time resolved measurements of gratings photo-induced by femtosecond pulses in a lead doped glass, accepté pour publication à Opt. Mater. Express

### 2 Brevets déposés

Brevet « Preparation of femtosecond laser induced oriented crystals in glasses » B. POUHELLEC, M. LANCRY, C. FAN, H. ZENG. PCT/IB 2011/002076, 5 août 2011.

Extension du brevet ci-dessus « Preparation of femtosecond laser induced oriented NANOcrystals in glasses » B. POUHELLEC, M. LANCRY, C. FAN, H. ZENG. PCT/IB 2012/065239, 5 août 2012

### CONTACT :

[Bertrand.Pommellec@u-psud.fr](mailto:Bertrand.Pommellec@u-psud.fr)

[Matthieu.Lancry@u-psud.fr](mailto:Matthieu.Lancry@u-psud.fr)

