



**HAL**  
open science

# Endommagement laser dans les composants optiques : métrologie, analyse statistique et photo-induite des sites initiateurs

Laurent Gallais

► **To cite this version:**

Laurent Gallais. Endommagement laser dans les composants optiques : métrologie, analyse statistique et photo-induite des sites initiateurs. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université de droit, d'économie et des sciences - Aix-Marseille III, 2002. Français. NNT : . tel-00081051

**HAL Id: tel-00081051**

**<https://theses.hal.science/tel-00081051>**

Submitted on 21 Jun 2006

**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.

UNIVERSITE DE DROIT, D'ECONOMIE ET DES SCIENCES  
D'AIX-MARSEILLE(AIX-MARSEILLE III)

**THESE**

présentée et soutenue publiquement  
par **Laurent GALLAIS** le **12 novembre 2002**

pour obtenir le grade de

DOCTEUR EN SCIENCES DE L'UNIVERSITE DE DROIT, D'ECONOMIE  
ET DES SCIENCES D'AIX-MARSEILLE

**ENDOMMAGEMENT LASER DANS LES  
COMPOSANTS OPTIQUES :  
METROLOGIE, ANALYSE STATISTIQUE ET  
PHOTO-INDUITE DES SITES INITIATEURS**

Spécialité : Electronique, Optronique et Systèmes  
Ecole Doctorale : Physique, Sciences de la Matière

**Rapporteurs :**

M. Hervé BERCEGOL

M. Pierre CHAVEL

**Jury :**

M. Claude AMRA (Directeur de thèse)

M. Hervé BERCEGOL

M. Jacques BOULMER

M. Pierre CHAVEL

M. Jean-Pierre HUIGNARD

M. Jean-Yves NATOLI (Directeur de thèse)

---

# Table des matières

<b>REMERCIEMENTS</b>	<b>i</b>
<b>INTRODUCTION</b>	<b>iii</b>
<b>1 RAPPEL BIBLIOGRAPHIQUE SUR LES MECANISMES D'ENDOMMAGEMENT LASER</b>	<b>1</b>
1.1 Introduction . . . . .	2
1.2 Les lasers de puissance . . . . .	4
1.3 Les verres . . . . .	4
1.3.1 Propriétés et Fabrication . . . . .	4
1.3.2 La silice . . . . .	6
1.3.3 Le BK7 (borosilicate) . . . . .	7
1.3.4 Le polissage des verres . . . . .	7
1.4 Quelques définitions et notions dédiées au domaine d'étude . . . . .	8
1.4.1 Définition de l'endommagement laser . . . . .	8
1.4.2 Seuil d'endommagement . . . . .	9
1.4.3 Les procédures de test . . . . .	9
1.4.4 La fluence . . . . .	11
1.4.5 Face avant/face arrière d'un échantillon . . . . .	11
1.5 Les principaux mécanismes d'endommagement . . . . .	12
1.5.1 Le claquage diélectrique . . . . .	12
1.5.2 Les effets thermiques . . . . .	15
1.5.3 Les effets du plasma . . . . .	16
1.5.4 Les mécanismes spécifiques aux couches minces . . . . .	17
1.6 Effets de tirs répétés . . . . .	20
1.6.1 Diminution de la tenue au flux lors de tirs répétés . . . . .	20
1.6.2 Augmentation de la tenue au flux lors de tirs répétés . . . . .	22
1.7 Conclusion . . . . .	24
<b>2 METROLOGIE DE L'ENDOMMAGEMENT LASER</b>	<b>27</b>
2.1 Introduction . . . . .	28
2.2 Influence des paramètres de tir sur le seuil d'endommagement . . . . .	28
2.2.1 Durée de l'impulsion . . . . .	28

2.2.2	Longueur d'onde . . . . .	29
2.2.3	Taille du spot et lois d'échelles . . . . .	31
2.3	Dispositif expérimental . . . . .	32
2.3.1	Originalités du dispositif . . . . .	32
2.3.2	Présentation du dispositif expérimental initial . . . . .	32
2.3.3	Evolution du dispositif . . . . .	35
2.3.4	Avantages du nouveau dispositif . . . . .	40
2.4	Détection de l'endommagement laser . . . . .	41
2.4.1	Comparaison des différentes méthodes existantes . . . . .	41
2.4.2	Développement d'une méthode de détection automatique par analyse d'image . . . . .	43
2.4.3	Détection automatique de claquage appliquée aux liquides	45
2.5	Contrôle rigoureux des conditions de tir . . . . .	46
2.5.1	Stabilité en énergie . . . . .	47
2.5.2	Contrôle du profil spatial . . . . .	47
2.5.3	Surface équivalente du faisceau laser . . . . .	48
2.5.4	Profil temporel . . . . .	51
2.6	Optimisation des paramètres de tir . . . . .	52
2.6.1	Nombre de tirs . . . . .	52
2.6.2	Maillage spatial . . . . .	53
2.6.3	Maillage temporel . . . . .	55
2.7	Procédures expérimentales . . . . .	56
2.7.1	Description des tests utilisés . . . . .	56
2.7.2	Précision des mesures . . . . .	56
2.7.3	Valeur du champ électrique pour de petits faisceaux . . . . .	58
2.8	Conclusion . . . . .	59
<b>3</b>	<b>MODELISATION, ANALYSE ET INTERPRETATION DES COURBES DE SEUIL D'ENDOMMAGEMENT</b>	<b>61</b>
3.1	Introduction . . . . .	62
3.2	Approche phénoménologique des nano-centres . . . . .	63
3.2.1	Cas de défauts sur la surface . . . . .	63
3.2.2	Cas de défauts dans le volume . . . . .	67
3.2.3	Cas des couches minces . . . . .	69
3.3	Validation du modèle par l'étude de liquides . . . . .	70
3.3.1	Approche expérimentale . . . . .	71
3.3.2	Résultats obtenus . . . . .	73
3.4	Application aux substrats optiques . . . . .	76
3.4.1	Volumes . . . . .	76
3.4.2	Surfaces des substrats . . . . .	79
3.4.3	Base de donnée des tenues aux flux des différents substrats	81
3.4.4	Cas d'une couche mince . . . . .	82
3.5	Tenue au flux lors de tirs répétés . . . . .	83

3.5.1	Mise en évidence expérimentale . . . . .	83
3.5.2	Etude de la durée de vie des défauts . . . . .	86
3.6	Corrélation à l'endommagement électrostatique . . . . .	88
3.6.1	Présentation de l'étude . . . . .	88
3.6.2	Préparation des échantillons . . . . .	89
3.6.3	Tests de claquage électrique des échantillons . . . . .	90
3.6.4	Résultats expérimentaux . . . . .	91
3.6.5	Analyse des résultats : comparaison à l'endommagement laser . . . . .	92
3.6.6	Bilan de l'étude . . . . .	94
3.7	Conclusion . . . . .	94
<b>4</b>	<b>ETUDE DES SITES PRECURSEURS PAR UNE ANALYSE MORPHOLOGIQUE DES ENDOMMAGEMENTS</b>	<b>97</b>
4.1	Introduction . . . . .	98
4.2	Endommagements sur la silice . . . . .	99
4.2.1	Cas de la face avant . . . . .	99
4.2.2	Cas de la face arrière . . . . .	102
4.2.3	Cas d'une couche mince de silice . . . . .	103
4.2.4	Bilan de l'étude . . . . .	104
4.3	Etude de l'interaction laser avec des nano-particules métalliques incluses dans de la silice . . . . .	105
4.3.1	Présentation des échantillons, méthodes de fabrication . . . . .	106
4.3.2	Caractérisation des cibles . . . . .	108
4.3.3	Analyse morphologique après tir sur les inclusions d'or de 400 à 800 nanomètres . . . . .	110
4.3.4	Analyse morphologique après tir sur des inclusions d'or de 3 nm . . . . .	114
4.3.5	Bilan de l'étude . . . . .	115
4.4	Croissance des endommagements . . . . .	116
4.4.1	Croissance lors de tirs répétés sur la surface . . . . .	116
4.4.2	Révélation de rayures . . . . .	118
4.4.3	Bilan . . . . .	118
4.5	Conclusion . . . . .	119
<b>5</b>	<b>TECHNIQUES NON-DESTRUCTIVES APPLIQUEES A LA DETECTION DES SITES PRECURSEURS DE L'ENDOMMAGEMENT LASER</b>	<b>123</b>
5.1	Introduction . . . . .	124
5.2	Calcul de la puissance absorbée par les sites précurseurs en fonction de la puissance incidente . . . . .	124
5.3	Application à la faisabilité d'une détection par les méthodes photothermiques . . . . .	126
5.3.1	Ordres de grandeur des puissances absorbées . . . . .	126

5.3.2	Défectivité des techniques photothermiques . . . . .	127
5.3.3	Application à la détection de nano-défauts . . . . .	127
5.4	Calcul de température en régime nanoseconde . . . . .	128
5.4.1	Calcul dans le cas d'une "boule" source . . . . .	128
5.4.2	Application au régime nanoseconde . . . . .	130
5.4.3	Discussion . . . . .	131
5.5	Application à la photothermie . . . . .	132
5.5.1	Principe des mesures photothermiques . . . . .	132
5.5.2	Calcul en régime harmonique . . . . .	133
5.5.3	Effet de la fréquence . . . . .	134
5.5.4	Répartition spatiale de la température . . . . .	135
5.6	Conclusion . . . . .	136
<b>6</b>	<b>EFFETS THERMIQUES DANS LES MATERIAUX ABSORBANTS : DEVELOPPEMENT D'OUTILS THEORIQUES ET EXPERIMENTAUX</b>	<b>137</b>
6.1	Introduction . . . . .	138
6.2	Calcul des élévations de température dans les milieux absorbants, en régime continu et pulsé . . . . .	138
6.2.1	Cas d'un dioptre . . . . .	139
6.2.2	Cas d'une couche mince . . . . .	144
6.2.3	Comparaison des 2 modèles, convergence et domaines de validité . . . . .	149
6.3	Validation des modèles - Comparaison aux résultats expérimentaux	151
6.3.1	Configuration expérimentale . . . . .	151
6.3.2	Comparaison mesures/calculs pour différentes longueurs d'impulsion . . . . .	152
6.4	Etude morphologique des endommagements sur les matériaux absorbants . . . . .	156
6.4.1	Durées d'impulsions de 1s à $10^{-4}$ s . . . . .	156
6.4.2	Impulsions nanosecondes . . . . .	157
6.4.3	Conclusion de l'étude morphologique . . . . .	160
6.5	Conclusion . . . . .	163
	<b>CONCLUSION ET PERSPECTIVES</b>	<b>165</b>
	<b>ANNEXES</b>	<b>167</b>
<b>A</b>	<b>Caractéristiques des verres de silice Herasil et Suprasil</b>	<b>169</b>
A.1	Herasil (quartz fondu) et Suprasil (silice synthétique) . . . . .	169
A.1.1	Propriétés mécaniques et thermiques . . . . .	169
A.1.2	Courbes de transmission . . . . .	170
A.1.3	Défauts et impuretés quantifiées par le fabricant . . . . .	170

A.2	Le BK7 (borosilicate) . . . . .	172
A.2.1	Propriétés mécaniques et thermiques . . . . .	172
A.2.2	Courbe de transmission . . . . .	172
<b>B</b>	<b>Caractérisation des lasers</b>	<b>173</b>
B.1	Mesures de stabilité en énergie . . . . .	173
B.1.1	1064nm, laser Quantel $\omega$ . . . . .	173
B.1.2	532nm, laser Quantel $\omega$ . . . . .	174
B.1.3	355nm, laser Quantel $3\omega$ . . . . .	174
B.2	Mesures du profil temporel . . . . .	175
B.2.1	1064nm, laser Quantel $\omega$ . . . . .	175
B.2.2	532nm, laser Quantel $\omega$ . . . . .	175
B.2.3	355nm, laser Quantel $3\omega$ . . . . .	175
B.3	Mesure de stabilité du waist . . . . .	176
B.3.1	1064nm, laser Quantel $\omega$ . . . . .	176
B.3.2	532nm, laser Quantel $\omega$ . . . . .	177
B.3.3	355nm, laser Quantel $3\omega$ . . . . .	178
B.4	Mesure de dépointage . . . . .	178
B.4.1	1064nm, laser Quantel $\omega$ . . . . .	178
B.4.2	532nm, laser Quantel $\omega$ . . . . .	178
B.4.3	355nm, laser Quantel $3\omega$ . . . . .	179
<b>C</b>	<b>Courbes de seuil</b>	<b>181</b>
C.1	Courbes de seuil des liquides . . . . .	181
<b>D</b>	<b>Microscopie à Force Atomique</b>	<b>185</b>
D.1	Principe de fonctionnement . . . . .	185
D.1.1	Interaction surface/pointe . . . . .	185
D.1.2	Les différents modes de fonctionnement . . . . .	187
D.2	Résolution des mesures . . . . .	188
D.2.1	Résolution verticale . . . . .	188
D.2.2	Résolution latérale . . . . .	188
D.3	Interprétation des mesures obtenues . . . . .	189
D.3.1	Artefacts de mesure liés à la géométrie de la pointe . . . . .	189
D.3.2	Effets dus à l'échantillon . . . . .	190
D.3.3	Calibration . . . . .	192
<b>E</b>	<b>Calculs de thermique</b>	<b>193</b>
E.1	Cas du dioptre : transformées de Laplace inverse de $\widehat{T}_1(z, p)$ et $\widehat{T}_2(z, p)$ . . . . .	193
	Cas du dioptre : transformées de Laplace inverse de $\widehat{T}_1(z, p)$ et $\widehat{T}_2(z, p)$ . . . . .	193



*TABLE DES MATIÈRES*

---

<b>F Morphologies d'endommagement du Nickel en couche mince</b>	<b>195</b>
F.1 Morphologies d'endommagement d'une couche de nickel (Irradiation d'une durée de 3s avec des énergies croissantes) . . . . .	195
<b>Bibliographie</b>	<b>197</b>

# REMERCIEMENTS

Cette thèse a été effectuée au sein de l'équipe Milieux Aléatoires et Photonique de Puissance de l'Institut Fresnel entre septembre 1999 et septembre 2002, grâce à un financement de la DGA.

Je tiens tout d'abord à exprimer mes plus sincères remerciements à Claude AMRA, Directeur de l'Institut Fresnel, et Jean-Yves NATOLI pour avoir co-dirigé cette thèse. Je suis tout particulièrement reconnaissant à Claude AMRA pour m'avoir fait confiance en m'accueillant dans son laboratoire et pour m'avoir fait partagé sa motivation et son enthousiasme au cours de ces trois années. J'exprime également tout ma gratitude à Jean-Yves NATOLI pour le soutien constant qu'il m'a apporté tout au long de la thèse et pour la grande disponibilité dont il a fait preuve.

Je remercie également Mireille COMMANDRE pour m'avoir accueillie au sein de son équipe et pour la confiance qu'elle me témoigne en me permettant de poursuivre ces travaux.

J'exprime toute ma gratitude à Messieurs Hervé BERCEGOL, directeur du Laboratoire Endommagement Laser du CEA CESTA, et Pierre CHAVEL directeur de recherches au Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, pour avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse. L'attention et l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail m'honore.

J'adresse mes remerciements à Messieurs Jacques BOULMER, directeur de recherche à l'Institut d'Electronique Fondamentale, et Jean-Pierre HUIGNARD de la société THALES, membres du jury, pour avoir accepté de juger ce travail.

Je voudrais également exprimer toute ma reconnaissance aux différents stagiaires qui ont participé directement à ce projet, pour leur implication et leur sympathie, à savoir, Dany DEVOS, Michela PERRA, Cyril ESCOLANO et Bertrand BERTUSSI qui prend la suite de ce travail et à qui je souhaite bonne chance pour sa thèse.

## REMERCIEMENTS

---

J'exprime toute ma sympathie à l'ensemble du personnel de l'Institut Fresnel, notamment aux thésards et particulièrement aux co-occupants du bureau 125Ter, Rémy PARMENTIER et Philippe VOARINO qui m'ont supporté pendant trois ans. Merci également à Olivier GILBERT pour m'avoir corrigé les fautes d'orthographe.

# INTRODUCTION

Des lasers de plus en plus puissants sont utilisés pour beaucoup d'applications modernes. C'est le cas dans le domaine des matériaux (usinage, perçage, soudure par laser, dépôts de couches par ablation laser, marquage de guides d'onde par laser femto-seconde. . .), dans le domaine de la biologie (spectroscopie par exemple) mais également dans celui de la médecine (découpe et réparation chirurgicale) et plus généralement dès que l'on cherche à confiner de la lumière dans de petites structures (fibres optiques, micro-composants optiques). Or, lorsque l'on augmente la densité d'énergie du laser dans un matériau, on peut tout d'abord observer des effets réversibles comme des échauffements qui peuvent provoquer des contraintes, des déformations ou bien des effets non linéaires. Si l'on augmente encore la quantité de lumière (soit en augmentant l'intensité initiale, soit en focalisant le faisceau laser sur sa cible), il se produit alors des effets irréversibles : fusion, vaporisation, craquelures, brisures, éclats, cratères, décollements des couches. . . Ces modifications permanentes du matériau sont définies comme l'endommagement laser. Ces effets sont mis à profit pour les applications de type "découpe" par exemple, mais constituent une limitation lorsque l'on souhaite conserver les performances d'un système sous flux laser. Cette conservation d'intégrité est indispensable pour les systèmes optiques. L'endommagement laser est dans ce cas un phénomène limitant le fonctionnement du composant optique. Dès l'invention des lasers, ces phénomènes ont été constatés, et de nombreuses recherches ont été effectuées sur ce sujet depuis plus de 30 ans. De plus, la mise en œuvre de grands projets ayant pour but de réaliser la fusion inertielle (projets Laser Méga Joule et National Ignition Facility) ou la séparation isotopique par laser (SILVA) a largement contribué à stimuler la communauté pour tenter de résoudre les problèmes de tenue au flux des composants optiques. Il faut constater aujourd'hui, que malgré de grandes avancées technologiques permettant une augmentation de la tenue au flux, nombre de questions concernant les mécanismes liés à l'endommagement laser ne sont pas résolues.

Dans ce contexte, la thématique "endommagement laser" a été développée au sein de l'Institut Fresnel depuis 1996 et une première thèse a été soutenue en 1998 sur ce sujet par P. Volto [1], qui a permis l'introduction d'une nouvelle culture au laboratoire.

L'étude réalisée dans la thèse que nous présentons ici concerne plus particulièrement la compréhension des mécanismes d'endommagement laser dans les verres et les couches minces en régime nanoseconde. L'objectif est de développer de nouveaux outils théoriques et expérimentaux pour la compréhension de ces phénomènes.

Nous présenterons tout d'abord dans le chapitre 1, un état de l'art du sujet. Dans cette partie, nous expliciterons ce qu'est l'endommagement laser et comment il se mesure. Au travers d'une étude bibliographique nous présenterons les différents mécanismes associés à l'endommagement laser dans les composants optiques. Nous nous intéresserons également aux propriétés et aux conditions de fabrication des matériaux qui seront au cœur de notre étude.

Le chapitre 2 sera consacré à la métrologie de l'endommagement laser. Dans un premier temps nous ferons un état de la connaissance actuelle à propos de l'influence des paramètres de tir sur le seuil d'endommagement laser. Puis nous présenterons l'outil de diagnostic performant qui a été développé, permettant notamment une détection très sensible et localisée des modifications liées à l'irradiation laser, associée à une mesure rigoureuse des paramètres de tir.

La suite (chapitre 3) sera consacrée à la modélisation, l'analyse et l'interprétation des probabilités d'endommagement mesurées grâce au dispositif expérimental. Nous verrons comment ces données peuvent être décrites par un modèle basé sur l'hypothèse de centres initiateurs de l'endommagement laser. Les cas de tirs uniques et de tirs cumulés seront traités, sur la surface et dans le volume des verres.

L'analyse morphologique des endommagements menée dans le chapitre 4 permettra d'étudier les processus d'endommagement laser mis en jeu. Grâce à l'utilisation d'un microscope à force atomique et d'un microscope Nomarski associés au banc de tenue au flux, nous analyserons les mécanismes d'initiation et de croissance de l'endommagement sur les surfaces et le volume des verres, ainsi que sur des échantillons de silice contenant des nano-défauts introduits artificiellement.

Après avoir mis en évidence la présence de défauts précurseurs de l'endommagement laser et étudié les mécanismes par des techniques destructrices, nous nous intéresserons à la mise en oeuvre de méthodes de détection non destructrices dans le chapitre 5. Nous discuterons du double problème localisation/défectivité et moyennant certaines conditions sur la taille et l'indice complexe des particules, nous montrerons comment dans les limites techniques actuelles, il est possible de les détecter.

Dans le dernier chapitre, nous nous intéresserons au développement de tech-

niques photothermiques en régime pulsé, mais en étudiant un cas simple : celui des matériaux fortement absorbants comme les métaux, qui sont utilisés pour réaliser des absorbeurs de lumière via des multicouches métal/diélectrique. Pour cela, un modèle thermique adapté au cas des volumes ou des couches minces sera présenté, et confronté aux mesures.

## INTRODUCTION

---

# Chapitre 1

## RAPPEL BIBLIOGRAPHIQUE SUR LES MECANISMES D'ENDOMMAGEMENT LASER

L'endommagement des composants optiques sous flux lumineux intense demeure un phénomène mal compris, en dépit des efforts consentis depuis plus de 30 ans par la communauté internationale. Ceci s'explique par la diversité des phénomènes physiques mis en jeu (fusion, vaporisation, claquage diélectrique, ondes de chocs, plasma, contraintes photo-induites, effets non-linéaires...) selon les conditions d'éclairement (laser continu, durées d'impulsion courtes (fs-ps) ou longues (ns- $\mu$ s), taux de répétition, longueur d'onde...) et la nature des matériaux (métaux, semi-conducteurs, diélectriques, cristaux, couches minces...). A titre d'illustration, le congrès annuel "Laser-Induced Damage in Optical Materials" publie depuis 1969 de volumineux proceedings recouvrant les progrès accomplis par les différentes équipes mondiales travaillant sur ces sujets.

Il n'est pas notre propos ici de résumer le détail de ces travaux basés sur des approches microscopiques ou macroscopiques, théoriques ou empiriques, mais nous proposons modestement quelques rappels bibliographiques illustrant l'absence de certitudes dans ce domaine d'activité.

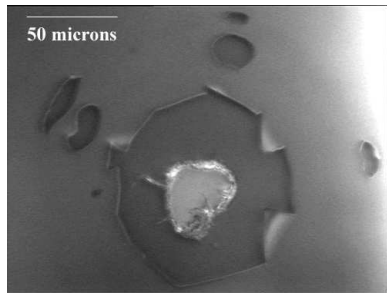


## 1.1 Introduction

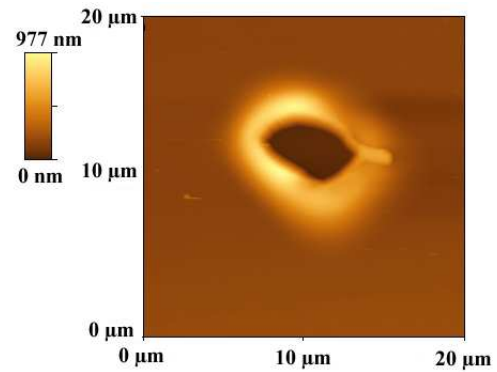
L'endommagement laser est défini comme une modification permanente de la matière, causée par une irradiation laser intense [2]. L'endommagement se caractérise le plus souvent par une détérioration physique du composant. Quelques exemples sont donnés figure 1.1. Des modifications plus fines comme des changements d'indice de réfraction ou d'autres propriétés du matériau peuvent être considérées comme des endommagements pour certaines applications.

L'origine de ces endommagements est souvent liée à la présence de défauts ou d'impuretés sur lesquelles s'initie le processus d'endommagement. Ces mécanismes dépendent à la fois du matériau (structure, propriétés mécaniques et thermiques. . .) et des paramètres de tir laser (durée d'impulsion, longueur d'onde. . .). L'objet de ce chapitre est donc de s'intéresser aux propriétés des différents matériaux étudiés au cours de cette thèse et aux mécanismes d'endommagement dans ces matériaux.

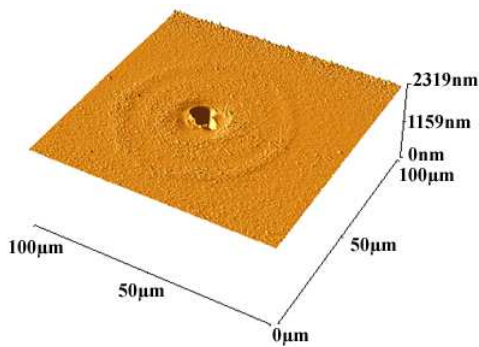
Pour cela nous commencerons par présenter brièvement les différents types de lasers de puissance et leurs domaines d'applications. Puis nous décrirons les différents matériaux utilisés dans le domaine des lasers, en nous intéressant plus particulièrement aux verres qui sont au coeur de cette étude. Par la suite, nous expliciterons précisément ce qu'est l'endommagement laser et quels sont les différents procédés permettant de le mesurer. Pour finir, nous étudierons les différents mécanismes associés à l'endommagement laser dans ces composants optiques, au travers d'une étude bibliographique.



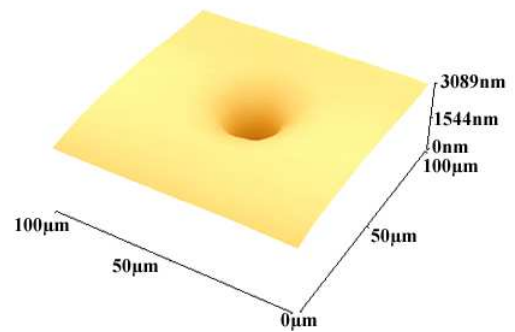
Décollement d'un anti-reflet multicouche



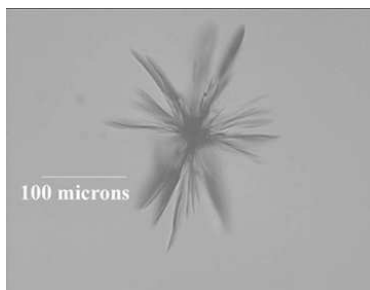
Fusion d'une couche de Nickel (AFM)



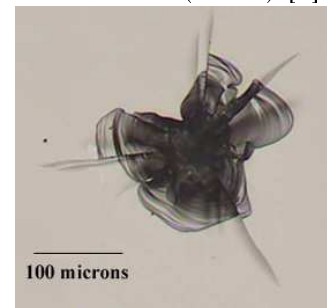
Cratère et brûlure d'une couche de  $SiO_2$  (AFM)[1]



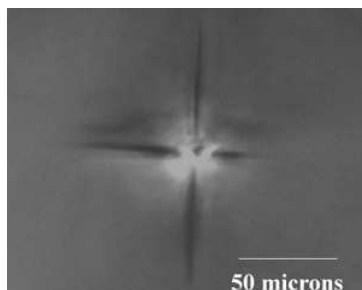
Cratère sur la face avant d'un verre (AFM) [1]



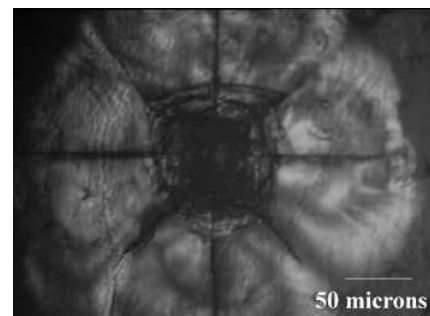
Brisures dans le volume d'un verre



Délamination sur la face arrière d'un verre



Brisures orientées, dans un cristal de KBr



Brisures orientées, dans un cristal de NaCl

FIG. 1.1 – Exemples d'endommagements laser dans différents matériaux optiques, observés par microscopie optique et microscopie à force atomique.

## 1.2 Les lasers de puissance

Ce paragraphe a pour objectif de présenter succinctement les différents types de lasers de puissance existant ainsi que leurs applications.

La figure 1.2 indique les différentes longueurs d'ondes de ces lasers. Leurs différentes caractéristiques, ainsi que les domaines d'applications très divers, sont recensés dans le tableau 1.1, en page suivante.

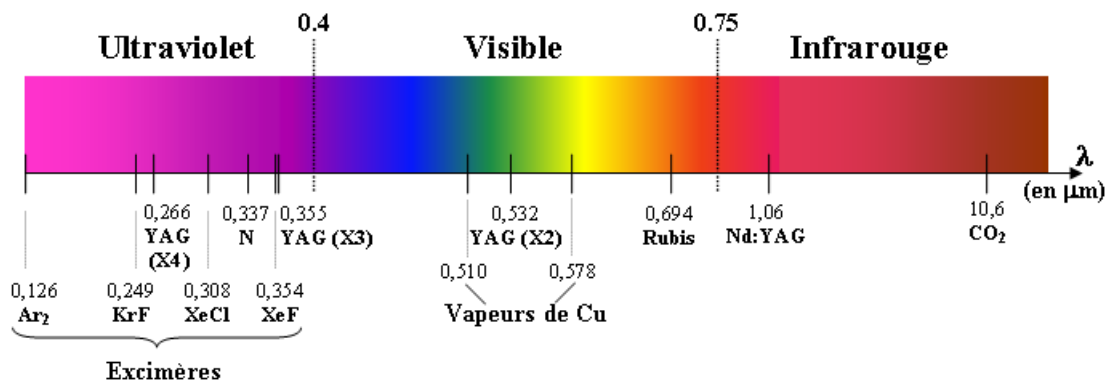


FIG. 1.2 – Longueurs d'onde de quelques lasers de puissance

## 1.3 Les verres

La connaissance des conditions de fabrication et des propriétés des verres s'avère indispensable pour la compréhension des mécanismes et de l'origine de l'endommagement dans ces composants.

### 1.3.1 Propriétés et Fabrication

Le verre est un corps solide, minéral, non cristallin, résultant du figement progressif de certaines substances après leur fusion. Son obtention peut être décrite d'une façon simple (d'après [3]).

La majorité des composés minéraux forme, en fondant, un liquide de viscosité très faible. En refroidissant, ils cristallisent rapidement au passage du point de fusion. Cependant, certaines substances donnent en fondant des liquides de viscosité très élevée. Un tel liquide, s'il est maintenu à une température inférieure à son point de fusion, aura tendance à cristalliser lentement, la phase cristalline étant thermodynamiquement la plus stable. Cependant, deux facteurs se combinent pour rendre possible une phase vitreuse : l'absence de nucléation du solide près du point de fusion et l'annihilation de la croissance des germes à plus basse température (à cause d'une viscosité élevée). Pour une vitesse lente le matériau va cristalliser, par contre pour une vitesse élevée, la viscosité, qui augmente avec

Matériau actif	Longueur d'onde (en nm)	Durée de l'impulsion	Cadence des impulsions	Energie ou puissance	Utilisation
Azote	337	100ns	1 à 100Hz	1mJ à 100mJ	photochimie, recherche, impression
Excimères (KrF, ArF, XeCl)	190 à 350	10ns à 60ns	1 à 10kHz	1mJ à 300mJ	impression, marquage, photochimie, spectroscopie, micro-usinage, nettoyage
Gaz ionisé (Kr, Ar)	350 à 800	continu		0.1 à 40W	spectroscopie, recherche, spectacles
Dioxyde de carbone $CO_2$	10600	10 à 100 ns	10kHz		découpage, marquage, perçage, soudure, traitement thermique
Rubis	694	10ps à 1ms	continu	1W à 50kW	couches minces par évaporation laser, perçage, micro-usinage
YAG-Néodyme	1064-532-355-266	30ps à 30ns	0.1 à 500Hz	0.1 à 10J	fusion thermonucléaire, perçage, recuits, vaporisation métal, nettoyage, gravure, soudure
Vapeurs métalliques	500 à 15000	20ns	continu	quelques mJ	recherche, séparation isotopique de l'uranium

TAB. 1.1 – Caractéristiques générales de différents types de lasers de puissance classés selon la nature du matériau actif

la décroissance de la température, va devenir si élevée que le matériau va se figer sous une forme amorphe. Le matériau ainsi obtenu aura toutes les caractéristiques d'un solide, mais possédera comme les liquides le caractère désordonné de la matière.

Le figeage du liquide n'est pas le seul moyen d'obtention des verres, comme nous allons le voir (partie 1.3.2).

### 1.3.2 La silice

La silice est un verre de composé  $SiO_2$ . Elle est souvent appelée quartz fondu (fused quartz) ou silice fondue (fused silica). Sa structure est composée de tétraèdres ( $SiO_4$ ) qui forment un réseau tridimensionnel désordonné (figure 1.3).

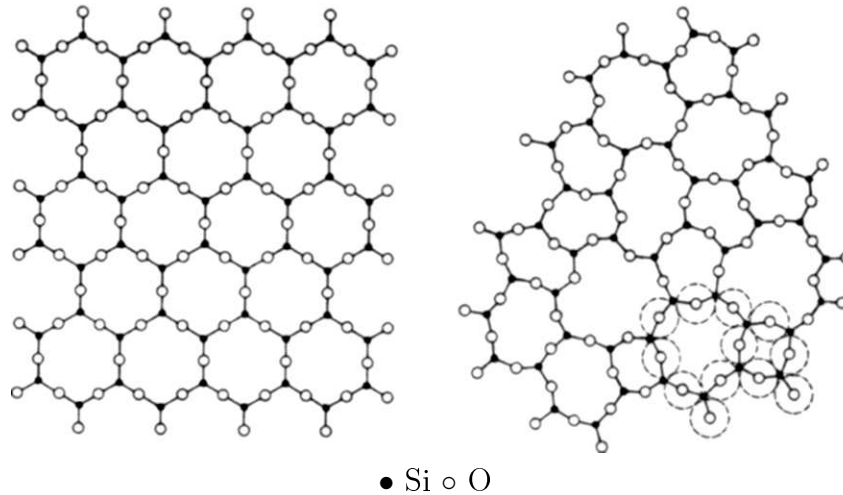
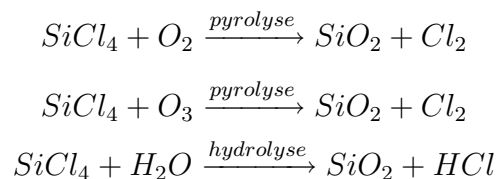


FIG. 1.3 – Représentation plane d'un réseau ordonné de  $SiO_2$  (cristal de quartz) et d'un réseau désordonné (verre). La quatrième valence du silicium est à imaginer au-dessus ou au dessous du plan de la figure (Image tirée du livre de H. Scholze[4]).

La silice peut être obtenue par fusion du quartz suivant le processus de fusion/refroidissement décrit précédemment. Mais également de manière "synthétique", par hydrolyse ou pyrolyse du  $SiCl_4$ , du  $SiH_4$  (Silane), ou d'autres composés Si-R, suivant les réactions suivantes (exemple donné pour le  $SiCl_4$ ) :



Ce procédé permet d'obtenir une transmission étendue dans l'UV (cf annexe A.1).

Les caractéristiques de deux types de ces verres qui ont été utilisés dans notre étude sont données dans l'annexe A.1. Il s'agit de l'Herasil (silice fondue) et du Suprasil (silice synthétique), fabriqués par Heraeus.

### 1.3.3 Le BK7 (borosilicate)

Le BK7 est un verre fabriqué à partir d'un grand nombre de composants. Il contient un fort pourcentage de  $SiO_2$  (70% à 80%), le reste de la composition étant 7% à 13% d'oxyde de Bore ( $B_2O_3$ ), 4% à 8% de  $Na_2O$  et  $K_2O_3$ , et 2% à 7% d'oxyde d'aluminium ( $Al_2O_3$ ). L'adjonction de ces différents oxydes permet de modifier les propriétés du verre.

Les différentes caractéristiques et propriétés de ce verre sont présentées en annexe A.2.

### 1.3.4 Le polissage des verres

Le polissage des verres constitue une étape critique pour la tenue au flux des composants. Le procédé le plus couramment utilisé consiste en une action abrasive de la surface. Cette abrasion est réalisée grâce à l'utilisation de différents produits de polissage, permettant de travailler sur une couche hydratée en surface du verre. De nombreuses étapes sont effectuées, avec des particules de plus en plus fines. Pour le polissage final, des liquides contenant des particules calibrées d'alumine, d'oxyde de Cérium... sont utilisés. Cette action abrasive entraîne l'existence de microcraquelures sous la surface, qui peuvent s'étendre jusqu'à une dizaine de microns [5] (voir figure 1.4).

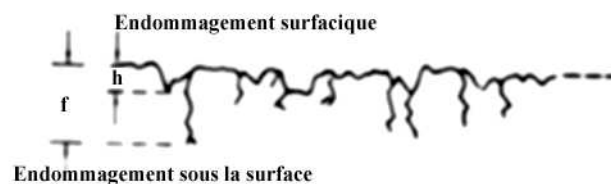


FIG. 1.4 – Représentation schématique de la surface d'un verre après abrasion (image tirée des travaux de Hed & al.[5])

De plus, des contaminants dus aux résidus de polissage peuvent polluer le matériau en surface ou sur une faible profondeur[6].

La figure 1.5 représente l'image AFM de la surface d'un verre ayant une bonne

tenue au flux, ainsi qu'un profil permettant d'observer la rugosité.

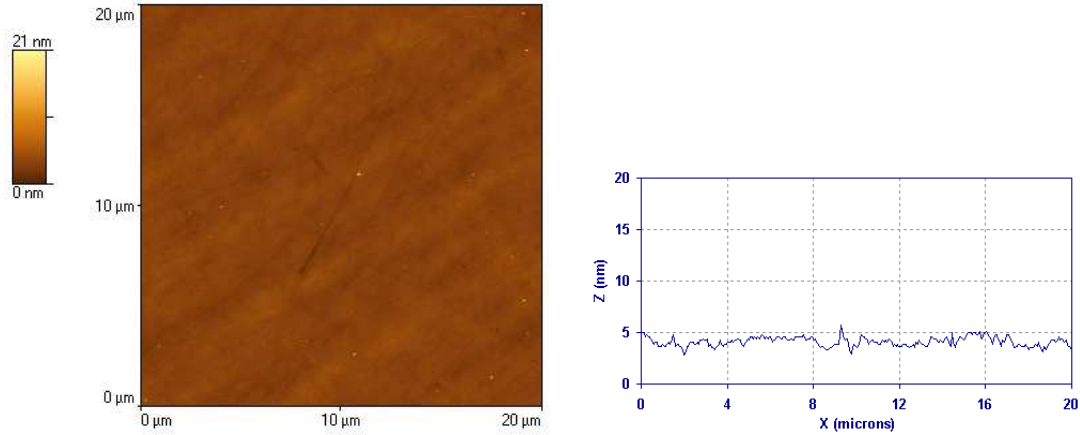


FIG. 1.5 – Image AFM et profil de la surface d'un verre de silice

De part l'aspect critique de l'étape du polissage pour la tenue au flux des composants optiques, ce sujet fait l'objet de constantes recherches et d'améliorations, comme en témoigne le nombre de brevets publiés sur ce sujet [7]. Des développements récents ont notamment permis l'utilisation de procédés de polissage "ioniques" (un faisceau d'ions abruse la surface[6]). Cette technique permettrait de réduire la contamination chimique de la surface.

Soulignons également qu'il est assez difficile d'obtenir des renseignements de la part des polisseurs sur leur procédés. De ce fait, nous n'aurons pas toujours les informations concernant cette étape, pour les verres que nous testerons.

## 1.4 Quelques définitions et notions dédiées au domaine d'étude

### 1.4.1 Définition de l'endommagement laser

Le critère d'endommagement laser définit le moment où l'utilisateur considère que son composant optique a subi une dégradation sous flux lumineux. Cette notion est donc subjective ; toutefois nous pouvons donner deux définitions qui permettent de mieux appréhender ce critère :

**L'endommagement fonctionnel** : il s'agit d'un endommagement qui modifie le fonctionnement du composant sous flux, c'est à dire que les spécifications constructeur du composant sont modifiées par l'irradiation. Par exemple, un miroir avec une réflexion donnée à 99.99% verrait cette réflexion baisser à 98%. Dans

la notion d'endommagement fonctionnel, on peut également introduire une notion de tolérance de dégradation. Dans le cas du miroir par exemple on pourrait dire que le critère d'endommagement est atteint lorsque le miroir réfléchit moins de 90%. On voit donc que l'endommagement fonctionnel va dépendre du cahier des charges imposé par l'utilisateur. Cette valeur ne pourra donc en aucun cas être une valeur absolue et sera difficilement comparable d'une expérience à l'autre.

**L'endommagement physique** : ce critère correspond à toute modification physique irréversible détectable par l'expérimentateur. On voit ici que l'on essaie de tendre vers une valeur absolue de ce que peut être un endommagement. La rupture de quelques liaisons chimiques dans le matériau irradié constituerait un endommagement. Il est clair que pour ce deuxième critère, plus adapté pour la compréhension de la physique du claquage sous flux, la difficulté majeure réside dans la détection de ces modifications. De plus, suivant les échelles de temps considérées, le caractère d'irréversibilité peut être discuté.

### 1.4.2 Seuil d'endommagement

Valeur limite de densité d'énergie ou de puissance à partir de laquelle le critère d'endommagement est atteint.

Par la suite, nous appellerons seuil bas la plus grande densité d'énergie ne provoquant aucun endommagement, et seuil haut la plus petite densité d'énergie à partir de laquelle l'endommagement a toujours lieu.

### 1.4.3 Les procédures de test

La mesure de l'endommagement laser est une mesure statistique, du fait de l'inhomogénéité des matériaux. Il est ainsi nécessaire de tester un grand nombre de zones à différentes énergies sur le composant, pour pouvoir le caractériser. Pour cela, différentes procédures de tests existent, dont les principales sont définies par des normes [2, 8], établies pour permettre d'éventuelles comparaisons entre les différents bancs de mesure. Nous verrons plus loin dans la partie bibliographique consacrée à l'influence des paramètres de tir sur le seuil d'endommagement laser (partie 2.2), la difficulté de cette tâche.

#### **Procédure "1-on-1"**

Pour une énergie donnée,  $N$  sites sont testés. Chaque site est irradié une seule fois, ce qui permet d'obtenir une estimation de la probabilité d'endommagement à cette énergie qui est de  $n/N$ , où  $n$  est le nombre de sites endommagés. En répétant cette mesure pour différentes énergies, il est possible de tracer une courbe de probabilité d'endommagement, appelée également courbe de seuil. Cette procédure, où chaque site n'est irradié qu'une seule fois, a l'avantage de



donner des valeurs de seuil très précises et apparaît la plus simple à interpréter. Cependant, un grand nombre de sites doit être testé, ce qui nécessite une zone de test importante sur l'échantillon. Suivant la taille du faisceau utilisé et la dimension de l'échantillon à étudier, il n'est pas toujours possible de tracer une courbe de seuil complète.

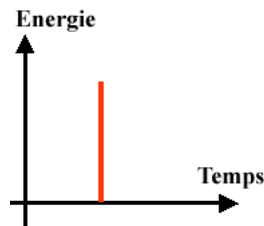


FIG. 1.6 – Energie vue par un site lors de la procédure 1-on-1

### Procédure "S-on-1"

Pour une énergie donnée, l'échantillon est irradié par des tirs répétés jusqu'au claquage, ou jusqu'à ce qu'un nombre maximum de tirs  $M$  soit atteint. Comme pour la précédente méthode, en répétant cette mesure sur différents sites et à plusieurs énergies, il est possible de mesurer des probabilités d'endommagement à  $M$  tirs. Cette procédure permet, outre la détermination du seuil en tirs cumulés, de mettre en évidence les effets de fragilisation ou de conditionnement du matériau lors de tirs répétés.

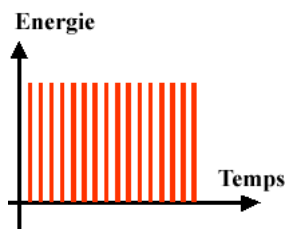


FIG. 1.7 – Energie vue par un site lors de la procédure S-on-1

### Procédure "R-on-1"

Cette méthode consiste à appliquer une rampe d'énergie sur l'échantillon jusqu'à l'apparition d'un endommagement. Ainsi, chaque site est endommagé et fournit une valeur de seuil. Cette méthode est couramment utilisée car elle a l'avantage d'affecter une valeur de seuil pour chaque site testé. Cependant, si cette procédure est bien adaptée à une étude statistique, les résultats peuvent être difficiles à interpréter puisqu'un grand nombre de paramètres interviennent

(fréquence de tir, nombre de tirs, pas en énergie de la rampe). Sur certains composants, on peut, en utilisant cette procédure de test, obtenir un seuil de tenue au flux supérieur à celui obtenu en mono-coup (1-on-1). C'est ce que l'on appelle un effet de conditionnement (voir partie 1.6).

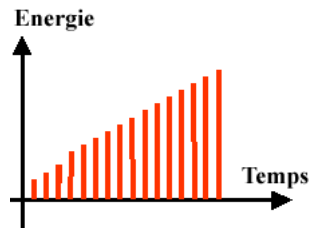


FIG. 1.8 – Energie vue par un site lors de la procédure R-on-1

### Procédure de "Raster Scan"

La procédure dite de "Raster Scan" permet de tester toute la surface d'un échantillon avec un spot de petite taille. L'idée de départ est de simuler par recouvrement de faisceaux, un faisceau de plus grandes dimensions, dans le but de prédire la tenue au flux de composants soumis à des faisceaux très larges [9]. Les zones sont testées une par une, comme indiqué dans la figure 1.9. Il est ainsi possible de repérer des zones plus fragiles sur l'échantillon ou des défauts isolés.

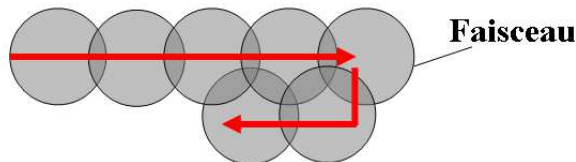


FIG. 1.9 – Représentation schématique du Raster scan

#### 1.4.4 La fluence

"Fluence" est un terme anglophone qui désigne la densité d'énergie par unité de surface à laquelle le matériau est soumis; elle est exprimée en  $J/cm^2$ .

#### 1.4.5 Face avant/face arrière d'un échantillon

On désigne par face avant la face d'entrée du faisceau laser dans l'échantillon, et face arrière la face de sortie (figure 1.10). Il est important de discriminer ces deux faces, même pour un échantillon symétrique, car, comme on pourra le voir plus loin, les comportements observés sont différents.

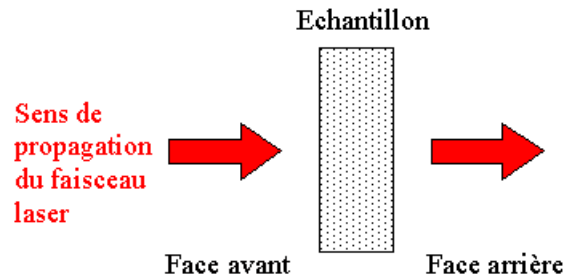


FIG. 1.10 – Désignation des faces avant et arrière

## 1.5 Les principaux mécanismes d'endommagement

Comme nous l'avons dit précédemment, l'endommagement laser est un phénomène complexe faisant intervenir différents mécanismes dépendant du matériau et des conditions de tir. Nous allons dans cette partie rappeler ces différents processus, en essayant de distinguer plusieurs grandes catégories. Gardons cependant à l'esprit qu'un endommagement peut être le résultat d'un mélange de ces différents mécanismes.

### 1.5.1 Le claquage diélectrique

#### Claquage électrique : cas d'un volume

Dans le cas de matériaux intrinsèques, c'est à dire exempts de tout défauts physiques ou chimiques, lorsque la valeur du champ électrique atteint une valeur "seuil" propre au matériau, le claquage diélectrique se produit. Une irradiation laser peut alors provoquer ce phénomène si le champ incident est supérieur au seuil de claquage. Or, les seuils d'endommagements mesurés diffèrent des seuils de claquage diélectrique attendus [10] : les valeurs mesurées sont toujours inférieures. L'explication la plus probable met en jeu la présence d'inhomogénéités dans le matériau, qui favoriseraient un claquage local pour des valeurs de champ plus faibles.

#### Effets d'avalanche électronique

Ces effets sont l'un des mécanismes de l'endommagement dans les solides transparents. On peut les décrire simplement de la façon suivante : un électron libre est chauffé par un champ électrique intense, c'est à dire qu'il passe de la bande de valence à la bande de conduction. Son énergie augmente, jusqu'à atteindre un niveau permettant d'en ioniser un second, en cédant une partie de cette énergie. Le processus se répète avec ces deux électrons, et le nombre d'électrons  $N$  croît suivant une loi exponentielle (ionisation en cascade).

Si la durée de l'impulsion laser est assez longue (picoseconde), le nombre d'électrons peut atteindre des proportions conduisant à un claquage (création d'un plasma électronique et échauffement de la zone irradiée [11]). Différents modèles ont été développés pour expliquer ces phénomènes et décrire l'endommagement laser dans un matériau diélectrique [12, 13, 14]. Ces théories supposent qu'il existe des électrons libres au départ ou des électrons photo-crés. D'autres modèles sont basés sur le fait que des défauts présents dans la matrice (comme des inclusions métalliques) joueraient le rôle de relais pour injecter les électrons dans la bande de conduction, provoquant l'endommagement par effet d'avalanche [15, 16].

### Absorption multiphotonique

Dans une série de publications [17, 18], un modèle sensiblement différent est développé. Il est basé non plus sur l'ionisation directe des électrons, mais sur la création d'électrons libres par absorption multi-photonique. Le processus de passage de la bande de valence à la bande de conduction se fait par l'absorption de plusieurs photons simultanément. L'échauffement des électrons, dû à l'action des photons, se transfère alors au matériau environnant. L'échauffement ainsi créé serait à l'origine de l'endommagement.

### Augmentation locale du champ liée à la présence d'inhomogénéités

L'initiation de l'endommagement qui entraînerait les mécanismes que nous avons décrits plus haut peut être également liée à des augmentations locales du champ, du fait de la présence d'inhomogénéités dans le matériau.

Ces sur-intensifications locales ont d'abord été quantifiées par Bloembergen [19] dans le cas des surfaces. La présence de rayures, de lacunes proches de la surface (bulles) ou d'inclusions absorbantes, peut provoquer des sur-intensifications du champ d'un facteur 2 à 5 (figure 1.11).

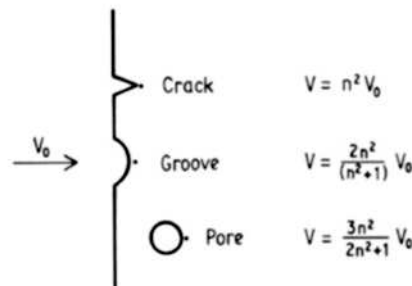


FIG. 1.11 – Augmentation locale du champ par des défauts.  $n$  est l'indice du matériau,  $V_0$  le champ dans le diélectrique uniforme et  $V$  le champ local amplifié. (Image tirée des travaux de Bloembergen [19])

Plus récemment, ces augmentations locales du champ ont pu être calculées précisément. Des cartographies du champ au voisinage de défauts sphériques ont été établies grâce à des modèles 2D [20, 21, 22]. Ces calculs montrent que des inclusions nanométriques peuvent augmenter le champ au dessus du seuil d'avalanche et ainsi conduire à l'endommagement. Ces augmentations locales du champ peuvent également se produire sur des rayures ou des craquelures à la surface du verre comme le montrent d'autres travaux [21].

### **Autofocalisation**

L'auto-focalisation est la réduction du diamètre du faisceau laser lors du passage dans un matériau, ce qui entraîne une concentration de l'énergie, pouvant être à l'origine d'un claquage.

Ce phénomène est lié à l'augmentation de l'indice de réfraction lorsque le matériau est irradié (effet Kerr), qui entraîne une focalisation du faisceau. Les effets se produisent dans des matériaux assez épais puisque les distances caractéristiques pour que le faisceau puisse se focaliser sont de l'ordre du centimètre [10]. Les endommagements observés dans ce cas ont souvent des formes filamenteuses.

### **Effets Brillouin**

La diffusion Brillouin résulte d'une interaction entre le matériau et l'onde électromagnétique, qui provoque la propagation d'une onde acoustique. A des niveaux de puissance élevés, l'onde acoustique peut provoquer des contraintes dans le matériau aboutissant à un endommagement.

Ce phénomène intervient plutôt pour des durées d'impulsion longues, ce qui permet à l'onde acoustique de s'amplifier et de se propager [10].

### **Etudes expérimentales des mécanismes de claquage diélectrique**

Dans le cas des verres, le rôle respectif de chacun des différents mécanismes cités précédemment dans l'endommagement n'est toujours pas clair à l'heure actuelle. C'est pourquoi différentes expériences sont développées pour valider les modèles. Nous en citons ici quelques unes.

Une difficulté majeure pour les modélisations provient de la méconnaissance des caractéristiques des sites précurseurs. L'expérience réalisée par Papernov & al [23] consiste à introduire artificiellement des défauts connus de taille nano-métrique. La morphologie des endommagements laser est ensuite analysée, pour obtenir des informations sur les processus mis en jeu, et les comparer aux modélisations. Les défauts introduits sont des particules d'or (5nm) insérées entre deux couches de silice. Les résultats obtenus sur les morphologies par Microscopie à Force Atomique, mettent en évidence des processus de fusion et de vaporisation du matériau hôte, dus à la présence de ces inclusions absorbantes. Les modèles associés montrent

dans ce cas que la formation des endommagements ne peut pas être due uniquement à l'absorption de la particule, mais suggèrent que le matériau environnant est devenu absorbant, et que la particule joue le rôle d'initiateur (ces expériences sont réalisées à 351nm, avec une durée d'impulsion de 0.5ns).

D'autres études expérimentales ont pour but de mesurer le temps de vie des porteurs créés par l'irradiation laser [24, 25, 26]. Le principe de ces expériences consiste à irradier, sous le seuil d'endommagement, l'échantillon avec deux impulsions femtosecondes colinéaires et décalées dans le temps de façon contrôlée (quelques centaines de femtosecondes). Le premier tir constitue le laser pompe en excitant des électrons, le deuxième tir la sonde. Il est ainsi possible de mesurer les temps de relaxation des effets créés par la première impulsion, en balayant sur plusieurs délais pompe/sonde. Les résultats des différents travaux sur ce sujet sont reportés dans le tableau 1.2.

Matériau testé	Longueur d'onde	durée d'impulsion	Résolution	temps de vie mesuré	Référence
silice amorphe et cristalline	600nm	70fs	120fs	<b>150fs</b>	[24]
silice amorphe	800nm	25fs	25fs	<b>100fs</b>	[25]
silice amorphe	795nm	440fs		<b>2ps</b>	[26]

TAB. 1.2 – temps de vie des porteurs mesurés par différentes équipes

## 1.5.2 Les effets thermiques

### Cas d'une inclusion absorbante

Dans beaucoup de matériaux pour l'optique, l'endommagement est initié par des "sites précurseurs" [27, 28, 29, 30, 31, 32, 33, 34, 1]. Une description simple consiste à considérer que le "site précurseur" est une inclusion ayant un fort coefficient d'absorption (métal par exemple).

Les élévations de température dues à une inclusion métallique dans un verre soumis à une impulsion laser de l'ordre de la nanoseconde, ont tout d'abord été évaluées par Hopper & al.[35]. Pour une impulsion de  $20 J/cm^2$  et de durée 30 ns, l'élévation de température trouvée est supérieure à  $10000^\circ K$ , pour des tailles de particules de quelques centaines de nanomètres. Les particules de plus grandes tailles provoquent une faible élévation de température du fait de leur masse thermique élevée. Un calcul de contraintes associé, montre que ces élévations de température induisent des contraintes en tension dans le matériau environnant. Ces contraintes provoqueraient l'endommagement par effet thermo-mécanique, ce qui expliquerait les morphologies observées (endommagement en forme d'étoile dans

le verre) [35]. Cependant, les distributions de température ainsi calculées dans le verre (la zone chauffée autour de la particule n'est que de quelques fois sa taille) n'expliquent pas la taille des endommagements observés qui est de plusieurs centaines de microns, alors que l'on tire sur une zone où aucun défaut n'est visible avant tir (donc sur des défauts sub-microniques).

### Cas d'un matériau absorbant

Les processus d'endommagement dans les verres par irradiation à  $10,6\mu\text{m}$  ont été largement étudiés, en particulier dans une thèse préparée à l'IRPHE [3]. Cette étude porte sur des matériaux optiques transparents dans le visible (BK7, silice fondue, ...). La durée des impulsions est de quelques 100ns à quelques  $\mu\text{s}$ , la taille du spot de quelques  $\text{cm}^2$ . Une modélisation numérique simulant l'évolution de la température et des contraintes est présentée, pour expliquer les résultats expérimentaux. Des mesures interférométriques sont également utilisées pour quantifier les contraintes. Les résultats suivant ont été obtenus :

- Pour le BK7, l'endommagement est caractérisé par un écaillage de surface qui se produit après irradiation. Le seuil est de  $0,9$  à  $1,2 \text{ J/cm}^2$  (soit  $0,26$  à  $0,34 \text{ MW/cm}^2$ ). Pour des énergies supérieures, le BK7 est fondu et vaporisé (apparition d'un plasma). Les mesures d'interférométrie mettent en évidence la présence de contraintes résiduelles de traction.
- Dans le cas du quartz fondu, les seuils mesurés sont de  $4,3$  à  $5,2 \text{ J/cm}^2$  (soit  $1,22$  à  $1,49 \text{ MW/cm}^2$ ), l'endommagement est caractérisé par la formation de fractures microscopiques. Pour des énergies plus élevées, l'endommagement se caractérise par la vaporisation du matériau en surface (avec apparition d'un plasma). De la même façon que pour le BK7, des contraintes de traction apparaissent, qui expliquent les fractures.

Les différences de comportement entre ces deux matériaux sont expliquées par les différences de coefficient de dilatation thermique (BK7= $8.10^{-6}/\text{K}$  et Silice= $4,8.10^{-7}/\text{K}$ ). Le code développé permet d'expliquer l'apparition de ces contraintes pendant la phase de refroidissement successive au tir.

### 1.5.3 Les effets du plasma

Sous l'action du laser, nous avons vu précédemment qu'un échauffement intense peut se produire dans le matériau et donner lieu à la création d'un plasma. Ce plasma, initié par de petits défauts dans le matériau ou sur la surface, peut contribuer au mécanisme d'endommagement et surtout à son expansion. Différentes situations peuvent être envisagées :

- Le plasma va irradier le matériau à des longueurs d'ondes différentes de celle du laser (UV, X) provoquant l'échauffement et l'ionisation du matériau environnant (brûlure plasma) [36]. L'absorption de ces irradiations peut également conduire à la formation de centres colorés [37], ou de défauts électroniques dans le verre qui vont augmenter l'absorption vue par les tirs suivants [38].
- La création d'un plasma sur la face avant (par exemple initié par une poussière) va entraîner une ionisation de l'air suivant un front se propageant de façon supersonique [38]. Les ondes de chocs ainsi générées peuvent provoquer un endommagement mécanique du matériau.
- Lors d'un endommagement sur la face arrière, le plasma sera cette fois localisé dans le matériau. Les pressions générées par ce plasma peuvent entraîner une éjection de la matière [38], provoquant un endommagement différent de celui de la face avant.

#### 1.5.4 Les mécanismes spécifiques aux couches minces

Le cas des couches minces est particulier et différent de celui des composants massifs pour plusieurs raisons : des défauts plus nombreux liés aux processus de dépôt, des effets d'interface, de répartition du champ dans les empilements. . .

##### **Morphologies d'endommagements caractéristiques des couches minces optiques**

Les endommagements observés sur les couches minces diffèrent de ceux observés sur la surface des matériaux massifs. Les différents types d'endommagement couramment observés dans les couches minces sont les suivants :

- écaillage (détachement d'une partie des matériaux)
- cratères
- délamination (décollement des couches en lamelles)
- brûlure plasma
- éjection de nodules

De nombreux travaux ont été entrepris sur l'amélioration de la tenue au flux des couches minces. On retiendra notamment de ces études la recherche de défauts précurseurs de l'endommagement. Certains types de défauts limitants ont été identifiés comme étant des "nodules".

##### **Les nodules**

Les nodules sont des défauts de croissance des couches minces. Ils peuvent être initiés par la présence de défauts sur la surface (résidus de polissage, contamination de la surface) ou le plus souvent par des agrégats projetés pendant la phase dépôt. Le recouvrement de ces "germes" par des couches successives entraîne



une déformation de la surface de la couche proportionnelle à la taille du défaut initial. Un modèle sphérique est généralement utilisé pour les décrire (figure 1.12)



FIG. 1.12 – Représentation schématique de la présence d'un nodule dans un empilement

Une relation géométrique simple relie la taille de la déformation en surface à la taille du germe [39] :

$$D_S^2 = 8eD_i \quad (1.1)$$

$D_i$  est le diamètre du germe,  $e$  l'épaisseur de l'empilement, et  $D_S$  le diamètre du nodule à la surface. La hauteur du dôme quant à elle est égale au diamètre du défaut. Dans ce cas, on peut remonter à la taille du germe par observation de la taille de la réplique visible en surface.

De nombreux travaux ont mis en évidence le rôle des germes dans l'endommagement laser [40, 30, 41, 39]. Ainsi, l'éjection de ces nodules et des différentes couches qui le recouvrent peut provoquer des écaillages, délaminations, brûlures des couches. La taille des nodules a une grande importance sur l'effet qu'ils auront sur la tenue au flux. La thèse de M. Poulingue effectuée au LETI sur ce sujet [39] a notamment mis en évidence des tailles critiques de nodules (quelques microns). Le contexte lié aux projets MégaJoule et NIF a fortement stimulé la communauté pour accroître les performances des miroirs et polariseurs à  $1,06\mu\text{m}$  qui constituaient un point bloquant. Les résultats de ces études ont permis de rétroagir sur les techniques de dépôts et de produire des couches ayant une haute tenue au flux. Les améliorations obtenues ont permis de gagner une décade sur la tenue au flux des miroirs [42].

### Le cas de couches absorbantes

Deux thèses ont été soutenues au LETI sur ce sujet [43, 44]. L'objectif de ces études est de caractériser et déterminer les mécanismes de destruction de miroirs (métaux monocouche et empilements métaux/diélectriques) sous irradiation continue de laser  $\text{CO}_2$  ( $10,6\mu\text{m}$ ).

La thèse de J.Hue [43] concerne plus particulièrement la caractérisation des endommagements. Deux processus liés à l'endommagement, l'initiation (seuil) et le vieillissement ont été mis en évidence. Le seuil représente l'endommagement pendant le régime transitoire, c'est à dire le dépassement d'une température de

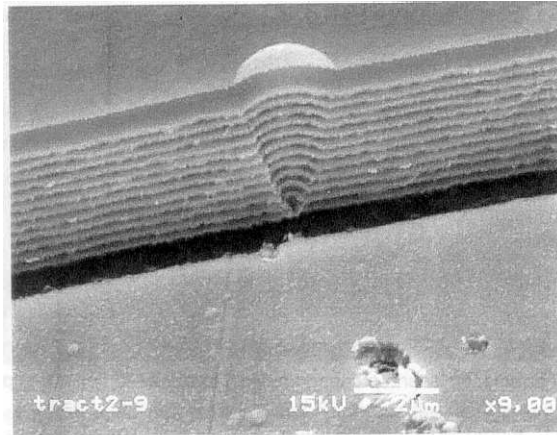


FIG. 1.13 – Coupe d'un nodule observé au MEB, image tirée de la thèse de M. Poulingue [39]

destruction lors de la mise en équilibre thermique. Le vieillissement résulte d'une variation de l'absorption initiale du composant en régime thermique stabilisé, qui provoque une augmentation de la température et le dépassement de la température de destruction.

Des mesures de température effectuées in-situ par caméra infra-rouge, associées à des modélisations thermiques, montrent que :

- Dans le cas de miroirs métalliques, la destruction est directement liée au dépassement de la température de fusion du matériau. Dans ce cas, le critère de l'atteinte de la température de fusion dans les modèles thermiques est un critère valable pour décrire le phénomène d'endommagement.
- Dans le cas d'empilements métaux/diélectriques on a un écart très important entre la température de fusion et la température de destruction ( $300^{\circ}\text{C}$ ). L'endommagement a alors une origine thermomécanique qui est étudiée en détail dans la thèse de E. Duloisy [44].

La modélisation thermo-mécanique mise en place permet de calculer le champ de contraintes induit dans un miroir multicouche sous l'action d'une répartition de température. Cette modélisation est associée à un dispositif de stimulation des contraintes qui consiste en une pointe thermostatée appliquée sur la surface de l'échantillon. Les résultats obtenus montrent que l'irradiation laser induit des contraintes de nature compressive. Ces contraintes participent aux processus de détérioration, et expliquent les morphologies observées. Cependant l'initiation de ces effets serait due à la présence de défauts dans les couches, qui ne sont pas identifiés.

## 1.6 Effets de tirs répétés

Lorsque l'on effectue des tirs répétés sur un matériau, deux phénomènes dont les conséquences sont opposées peuvent se produire. On peut observer suivant les cas, soit un effet de fatigue du matériau qui entraîne une diminution de la tenue au flux, soit une augmentation du seuil d'endommagement par rapport au seuil obtenu en mono-coup. Les deux parties suivantes sont consacrées à la quantification de ces phénomènes et aux mécanismes associés.

### 1.6.1 Diminution de la tenue au flux lors de tirs répétés

#### Quantification de la diminution du seuil pour différents matériaux

Dans certains matériaux, en tirant  $N$  fois sur un même site, un endommagement peut apparaître à une densité d'énergie  $S_N$  inférieure au seuil qui serait mesuré en monocoup, que l'on appellera  $S_1$ . Ce phénomène a été observé et étudié dans différents matériaux transparents tels que les polymères [45], les solides cristallins [46, 47, 48] et les verres [49, 50, 51, 52, 53, 52, 54, 55]. Le tableau 1.3 donne des valeurs de ces réductions de seuil, observées par différentes équipes.

Matériau testé	Longueur d'onde	durée d'impulsion	N	$S_N/S_1$	Référence
Silice synthétique/ silice fondue	532/355nm	6ns	1200	<b>0.6 à 0.8</b>	[56]
silice fondue	532nm	7.5ns	200	<b>0.6</b>	[57]
BK7/silice fondue/ quartz	1064/532nm	16/10ns	1000	<b>0.6 à 0.8</b>	[54]

TAB. 1.3 – Dépendance du seuil d'endommagement au nombre de tirs

D'après ces différents résultats expérimentaux, il semble exister une énergie en dessous de laquelle il n'y a jamais d'endommagement. Pour les verres, elle correspondrait à 0.6 fois le seuil en mono-coup. Cependant dans tous ces travaux, peu de sites ont été testés en multi-coups et l'échantillonnage n'est donc peut être pas suffisant pour retenir cette valeur.

La similitude entre les morphologies d'endommagement observées en mono-coup et en multi-coup dans les différents travaux cités, semble indiquer que les processus d'endommagements sont similaires.

Cependant, les théories d'avalanche électronique et d'absorption multiphotonique dont nous avons parlé précédemment ne permettraient pas d'expliquer l'effet de dégradation du matériau sous seuil [58]. Nous allons ici citer différentes hypothèses permettant d'expliquer ces processus.

### Mécanismes pouvant être impliqués

Plusieurs théories ont été émises pour expliquer ces phénomènes. Elles ont été synthétisées et discutées dans une étude publiée par Chmel [58]

– Modèle statistique

Si la probabilité d'endommager un site au bout de  $N$  tirs, était indépendante des tirs précédents, on aurait la relation suivante entre  $p(N)$  (probabilité d'endommager au bout de  $N$  tirs) et  $P_1$  (probabilité d'endommagement en monocoup) :

$$p(N) = (1 - P_1)^{N-1} P_1 \quad (1.2)$$

Or Merkle & al. [52] ont montré expérimentalement que cette relation n'était pas vérifiée dans le cas de la silice. Ceci implique qu'il existe un effet "mémoire" du matériau. L'action de chaque tir dépendrait ainsi des précédents.

– Inclusion absorbante

Cette hypothèse est basée sur le modèle thermique de Hopper & al [35] décrit dans la section 1.5.2. L'échauffement de l'inclusion par des tirs successifs, en se transmettant au matériau hôte, provoquerait l'augmentation des contraintes dans le matériau ou la modification du matériau environnant par des réactions chimiques.

Dans le cas de cette hypothèse, la taille des inclusions doit être supérieure à la dizaine de nanomètres pour que l'échauffement soit suffisant.

– Endommagements à l'échelle moléculaire

Les tirs créeraient des modifications à un niveau microscopique et l'accumulation de ces endommagements microscopiques conduirait à un endommagement macroscopique, c'est à dire visible au microscope. Ces modifications microscopiques pourraient être la rupture de liaisons moléculaires [59, 51]. La rupture par exemple de liaisons Si-O dans la silice, conduirait à la formation de molécules O-O. Une présence d'oxygène en excès pourrait ainsi induire de l'absorption par les tirs suivants [60]. La rupture de ces liaisons pourrait également faciliter le déclenchement des processus d'avalanche électronique (présence de liaisons pendantes).

– Création de centres colorés

Des défauts absorbants (centres colorés) pourraient être créés dans la matrice lors d'un tir sous seuil. Il en résulterait une augmentation de l'absorption lors du tir suivant, qui provoquerait un échauffement de la matière et la création de nouveaux centres colorés. L'échauffement généré par ces centres absorbants aboutirait à la rupture mécanique de la matière par l'importance des contraintes. Un modèle basé sur ce principe a été développé

par Jones & al. [48]. Ces centres colorés peuvent être des liaisons pendantes, de l'oxygène en excès. . . Différentes définitions des centres colorés existent ; dans tous les cas, leur dénomination provient du mécanisme de relaxation des électrons excités par le flux laser qui provoque une émission à des longueurs d'ondes qui modifient "la couleur" du milieu. Une particularité des centres colorés concerne leur durée de vie limitée. Suivant la durée de l'impulsion, la fréquence de répétition, ils peuvent ainsi être considérés comme des défauts réversibles ou irréversibles.

Une récapitulatif des différents défauts pouvant être induits dans la silice est présenté dans la figure 1.6.1.

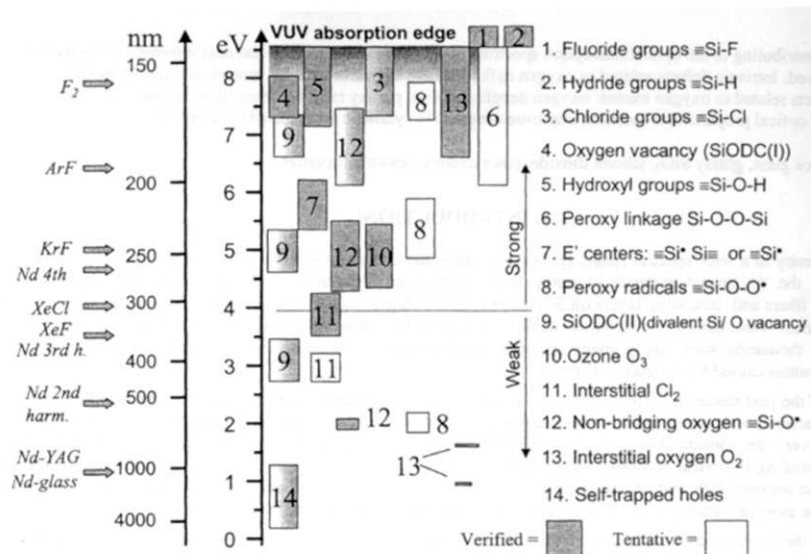


FIG. 1.14 – Bandes d'absorption des défauts dans la silice et correspondance avec les longueurs d'onde des lasers les plus courants (figure tirée des travaux de Skuja & al. [61])

Enfin, soulignons qu'aucun des modèles présentés n'est clairement validé expérimentalement à ce jour. Nous pouvons également imaginer que ces différents modèles se recoupent et que les processus physiques mis en jeu pourraient faire intervenir ces différents aspects.

### 1.6.2 Augmentation de la tenue au flux lors de tirs répétés

L'irradiation multiple peut provoquer l'effet inverse de ce qui a été décrit précédemment, c'est-à-dire produire une modification du matériau ayant un effet bénéfique au regard de la tenue au flux du composant. Une application majeure

est de pouvoir augmenter la tenue au flux des composants par une pré-irradiation laser [62].

### Quantification de l'augmentation du seuil pour différents matériaux

La pré-irradiation d'échantillons par des tirs sous seuil permet donc dans certains cas d'augmenter de manière sensible leur tenue au flux : on parle alors de conditionnement du matériau. Nous donnons dans le tableau 1.4 quelques valeurs d'augmentations de seuil relevées dans la littérature. Notons que le cas de l'utilisation d'un laser  $CO_2$  pour améliorer la tenue au flux dans le cas d'un laser YAG ne peut pas vraiment être recouvert par le terme "conditionnement laser", mais peut être plutôt désigné comme une technique permettant d'augmenter la tenue au flux.

Matériau testé	Longueur d'onde	durée d'impulsion	procédure utilisée	effet	Réf.
couches $LaF_3/MgF_2$	248nm	25ns	Son1 (1000pulses) Ron1 (100 à 200)	<b>X2 à 3</b>	[63]
silice (surface)	1064nm	9 et 1ns	pre-irradiation par laser $CO_2$	<b>X2 à 3</b>	[64]
$HfO_2/SiO_2$ $ZrO_2/SiO_2$	1064nm	8ns	Ron1	<b>2.7</b> <b>1.5</b>	[65]
KDP	1064nm	1ns	Son1	<b>+de 1.5</b>	[66]

TAB. 1.4 – Exemples d'effets d'augmentation du seuil d'endommagement par pré-irradiation laser

Nous voyons que ces effets de conditionnement ont été observés dans de nombreux matériaux. Dans les meilleurs cas, la tenue au flux augmente d'un facteur 2 à 3. Mais ces valeurs ne peuvent être qu'indicatives et ne représentent pas une valeur absolue de l'augmentation du seuil. En effet, comme nous le verrons dans la partie suivante, les mécanismes sont tels que ces effets de conditionnement vont dépendre de nombreux paramètres comme la préparation de l'échantillon (condition de dépôt des couches, nettoyage des substrats...) et la façon dont sont effectuées les pré-irradiations (nombre, laser utilisé...).

### Mécanismes possibles de conditionnement

Du fait du caractère assez empirique des travaux sur le sujet, les mécanismes que nous décrivons proviennent de cas particuliers mais permettent d'illustrer différents scénarii possibles :

- Ejection de défauts

Des tirs à basse énergie peuvent éjecter ou vaporiser des défauts dont le seuil

est plus faible que celui du matériau intrinsèque, comme des impuretés sur la surface de substrats par exemple.

– Stabilisation des nodules

Nous avons montré que la présence de nodules pouvait limiter la tenue au flux des couches (section 1.5.4). L'action de tirs sous le seuil aurait pour effet de stabiliser ces nodules [67], mais aucune explication satisfaisante ne permet aujourd'hui d'expliquer les processus physiques mis en jeu.

– Recuit du matériau

Les effets de conditionnement observés sur la surface de la silice lors d'irradiation par laser  $CO_2$ , peuvent être dus à des effets de recuit laser. L'échauffement important du matériau (irradiation à  $10,6\mu m$ ) permettrait alors de "réparer" les craquelures dues au polissage, hypothèse proposée par Temple & al. [64].

Des travaux de Eva & al. [63] à 248nm ont montré que cette méthode de conditionnement par recuit dans des couches de  $LaF_3/MgF_2$ , avait pour effet de diminuer l'absorption (mesures par effet mirage) et de changer la structure du matériau près de la surface (analyses par MEB), alors que la surface elle-même restait inchangée (analyses AFM).

– Désorption d'eau

Des contaminants d'origine atmosphérique peuvent être adsorbés par les couches. Les couches poreuses ont par exemple la caractéristique d'être hydrophiles. La pré-irradiation de ces couches permettrait de désorber les molécules d'eau, et ainsi de diminuer le seuil d'endommagement en faisant diminuer l'absorption [68]. Ces effets de désorption ont été mis en évidence en conditionnant des verres par laser et par passage dans une chambre à vide [69]. On peut noter que dans ce cas le conditionnement est non permanent.

– "micro endommagements"

L'émission de particules telles que Hf, Si, O,  $O_2$  a été observée lors du conditionnement de couches de  $HfO_2/SiO_2$  [70]. Les auteurs de ces travaux ont supposé que des microfractures se produisaient dans le matériau lors des pré-irradiations, provoquant ainsi l'éjection de particules. Ceci permettrait de réduire l'absorption et les contraintes thermiques dans le matériau, et donc d'augmenter la tenue au flux.

## 1.7 Conclusion

Dans cette première partie, après avoir introduit les bases de la thématique de l'endommagement laser dans les composants optiques, nous avons présenté une étude bibliographique modeste sur les phénomènes d'endommagement dans les matériaux diélectriques, absorbants, et ce dans le cas de composants optiques massifs ou en couches minces. Les effets de diminution et d'augmentation de la tenue au flux ont été également abordés, et des hypothèses sur les mécanismes

ont été présentées.

Il ressort de cette étude que si certains phénomènes d'endommagements sont bien compris et modélisés, il reste encore beaucoup de questions posées. On peut notamment remarquer le manque de compréhension et d'avancées au niveau de la tenue au flux des verres et couches minces lors de tirs uniques ou répétés. Le travail qui a été mené au cours de cette thèse, et que nous allons présenter, apportera des éléments permettant d'identifier des mécanismes, et donc de privilégier certaines hypothèses. En particulier la précision de la métrologie et nos travaux dans le volume des composants, qui permettent de contourner les problèmes de pollution/contamination, permettront de lever nombre d'ambiguïtés.



*CHAPITRE 1. RAPPEL BIBLIOGRAPHIQUE SUR LES MECANISMES  
D'ENDOMMAGEMENT LASER*

---

## Chapitre 2

# METROLOGIE DE L'ENDOMMAGEMENT LASER

Dans ce chapitre nous présentons la métrologie que nous avons mise en œuvre pour quantifier la tenue au flux des composants optiques. L'effort est tout d'abord axé sur la précision des mesures, qui nous permet de construire une base de données, à la fois sur les composants et l'interprétation des phénomènes. Par ailleurs, cette précision nous permettra ainsi de lever nombre d'ambiguïtés que l'on peut trouver dans la littérature.

Le deuxième effort porte sur l'optimisation de l'appareillage, indispensable à une analyse rapide et objective des échantillons. Cette réalisation nous permet aujourd'hui de disposer d'un banc de mesure pratiquement unique dans le monde. En particulier les résultats que nous obtenons doivent désormais garantir la conformité des valeurs que peuvent obtenir différentes équipes sur le même échantillon.

## 2.1 Introduction

Au cours des 30 dernières années, de nombreux bancs de mesure de tenue au flux ont été développés afin d'améliorer la compréhension des phénomènes d'endommagement laser [71, 29, 33, 72, 73, 74, 75, 76, 77, 78, 47, 55]. La principale difficulté dans l'interprétation des résultats est liée aux nombreux paramètres mis en jeu lors de l'endommagement laser tels que la longueur d'onde [47], le profil spatial [79] et temporel du faisceau [80], la taille du spot [27], le nombre de tirs [49], le critère d'endommagement [81], la procédure de test [82]. . . La diversité des seuils obtenus dans ces différentes conditions implique des difficultés à effectuer des comparaisons entre les laboratoires [83, 82]. Le souhait d'obtenir une mesure reproductible de seuil d'endommagement laser n'est toujours pas atteint à ce jour. Cette idée requiert une parfaite connaissance de toutes les caractéristiques du banc de test, ainsi qu'une définition précise du critère d'endommagement. Dans ce contexte, nous avons entrepris d'améliorer le banc de mesure de tenue au flux afin de maîtriser et de contrôler avec précision l'ensemble des paramètres de tirs.

Tout d'abord nous présenterons à partir d'une étude bibliographique, un état de la connaissance actuelle à propos de l'influence des paramètres de tirs sur le seuil d'endommagement laser. Puis, après avoir présenté le dispositif de mesure de tenue au flux de l'Institut Fresnel existant au début de la thèse, nous décrirons toutes les améliorations au niveau de la métrologie de l'endommagement, qui ont été apportées depuis : détection d'endommagement précise par analyse d'image, contrôle des caractéristiques du laser en temps réel, correction sur la mesure de la densité d'énergie, optimisation des paramètres de test, automatisation.

## 2.2 Influence des paramètres de tir sur le seuil d'endommagement

La variété des lasers utilisés sur les différents bancs de mesure rend complexe la comparaison des seuils d'endommagement. Des bilans comparatifs inter-laboratoires sur des échantillons communs, ont clairement mis en évidence la diversité des seuils obtenus [82]. Dans un souci de clarification, nous présentons donc ici un état de l'art concernant l'influence des paramètres du faisceau sur la tenue au flux.

### 2.2.1 Durée de l'impulsion

Connaître la dépendance du seuil par rapport à la durée d'impulsion laser est une information essentielle sur les mécanismes mis en jeu. Cependant il est difficile d'utiliser les valeurs de seuils obtenues sur des bancs ayant des durées d'impulsion différentes (beaucoup trop d'autres paramètres varient). Nous ne

## 2.2. INFLUENCE DES PARAMÈTRES DE TIR SUR LE SEUIL D'ENDOMMAGEMENT

présenterons donc ici que les travaux où les durées d'impulsions ont été modifiées sur le même banc, et les mesures effectuées dans les mêmes conditions opératoires.

Matériaux testés	gamme d'impulsions testées	Longueurs d'onde	Dépendance temporelle du seuil	Réf.
$SiO_2$	40ps à 30ns (4 valeurs)	1064nm	$t^{0.5}$	[84]
NaCl	40ps à 30ns (4 valeurs)	1064nm	$t^{0.5}$	
$SiO_2$ (quartz fondu)	150fs à 7ns (8valeurs)	780nm	$t^{0.5}$ (pour $t > 10ps$ )	[85]
$SiO_2$ (quartz fondu)	270fs à 1ns (~30valeurs)	1053 &526nm	$t^{0.5}$ (pour $t > 10ps$ )	[86]
$HfO_2/SiO_2$ (multicouche)	140fs à 1ns (~20valeurs)	1053 &526nm	$t^{0.5}$ (pour $t > 20ps$ )	[80]

TAB. 2.1 – Dépendance du seuil d'endommagement (densité d'énergie) en fonction de la durée de l'impulsion

De ces différents travaux (tableau 2.1), il ressortirait que pour des durées d'impulsion supérieures à quelques dizaines de picosecondes, la dépendance temporelle du seuil est en  $\sqrt{t}$ , caractéristique de phénomènes thermiques. Dans ces gammes d'impulsions, les morphologies d'endommagement en surface, analysées par Microscopie Electronique à Balayage (Stuart&al.[86]), font apparaître d'après les auteurs, une fusion du matériau, ce qui confirme le mécanisme thermique. Cette dépendance en  $\sqrt{t}$  n'est plus observée pour des durées d'impulsions inférieures à la dizaine de picoseconde. Des divergences apparaissent entre les différentes dépendances trouvées par Du & al. [85] et Stuart & al. [86, 80]), et aucune dépendance temporelle ne ressort clairement. Dans ce cas les morphologies observées par Stuart & al. font état selon eux d'un endommagement superficiel, caractéristique d'une ablation.

Dans tous les cas ces conclusions doivent être prises avec précaution. On sait par exemple que les effets non-linéaires sont prédominants pour les courtes impulsions (fs/ps), contrairement aux phénomènes thermiques qui gouvernent les processus pour les impulsions longues ( $\mu s$ , ms). Le régime nanoseconde, quant à lui, est plus complexe dans la mesure où tous ces phénomènes peuvent exister conjointement.

### 2.2.2 Longueur d'onde

Les études de tenue au flux sont effectuées selon la longueur d'onde d'utilisation du composant testé. Ainsi, pour un matériau donné, on trouve dans la littérature de nombreuses valeurs pour des longueurs d'ondes allant de  $10.6 \mu m$  à l'UV profond. Mais la diversité des conditions de tests rend difficile la comparaison de ces valeurs. Quelques études multilongueurs d'ondes, effectuées chacune

dans les mêmes conditions expérimentales, sont présentées dans le tableau 2.2

Matériau testé	Seuil d'endommagement à différentes longueurs d'onde				Réf.
	1064nm	532nm	355nm	266nm	
Quartz fondu	$110J/cm^2$ t=24ns	$90J/cm^2$ t=15ns	$35J/cm^2$ t=13ns		[47] (ref1)
Quartz fondu	$4.5J/cm^2$ t=10ps	$2.2J/cm^2$ t=10ps			[86] (ref2)
Quartz fondu	$1500J/cm^2$ t=16ns	$110J/cm^2$ t=10ns			[55]
Quartz fondu	$29J/cm^2$ t=1.1ns	$22J/cm^2$ t=0.95ns	$18J/cm^2$ t=0.85ns	$7J/cm^2$ t=0.75ns	[87] (ref3)

TAB. 2.2 – Seuils d'endommagements en fonction la longueur d'onde d'irradiation

Pour comparaison, ces valeurs sont rapportées à une irradiation de durée 1ns (figure 2.1), en s'appuyant sur la dépendance en  $\sqrt{t}$ , explicitée dans le paragraphe précédent.

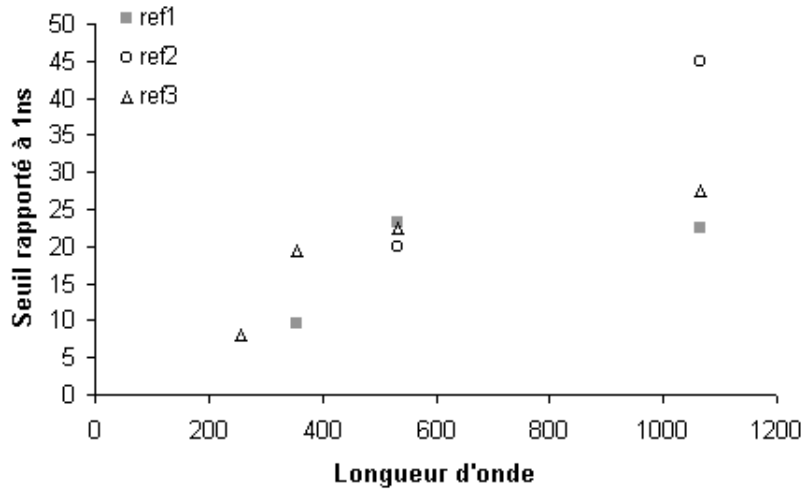


FIG. 2.1 – Seuils d'endommagement pour plusieurs harmoniques d'un laser YAG, mesurés par différentes équipes (références dans le tableau 2.2)

Il est clair que l'interprétation de la dispersion chromatique des seuils requiert la connaissance de l'absorption spectrale des matériaux.

### 2.2.3 Taille du spot et lois d'échelles

La maîtrise des lois d'échelle est d'importance dans le cas où l'on souhaite prédire la tenue au flux d'optiques de grandes dimensions (donc très coûteuses) en testant avec précision de petits composants ayant les mêmes caractéristiques.

Nous avons vu que l'endommagement pouvait s'initier sur des points faibles du matériau. Dans ce cas la tenue du composant va dépendre de la taille du spot d'irradiation par rapport à la distribution des défauts. Pour des faisceaux de petites tailles, il est possible de trouver des zones exemptes de défauts sous le spot. On obtient ainsi une distribution des seuils d'endommagement en fonction de la densité d'énergie incidente. Des approches phénoménologiques ont permis de modéliser ces courbes de probabilité d'endommagement en fonction de différents paramètres tels que la densité des défauts, l'énergie incidente et la taille du spot (voir partie 3 sur la modélisation des courbes de seuil). D'après ces modèles, il existe un seuil indépendant de la taille du spot à partir duquel on observe l'endommagement (seuil bas), qui est le seuil propre aux défauts. Ainsi on sait très bien théoriquement décrire l'influence de la taille du faisceau sur le seuil d'endommagement.

Néanmoins, de nombreuses expériences ont mis en évidence une dépendance de la taille du spot sur le résultat [88, 89, 90, 91, 47] : le seuil d'endommagement diminue avec la taille du spot. Ces résultats s'expliquent en sachant que le seuil d'endommagement défini dans ces expériences, correspond à une probabilité d'endommagement de 50%. Dans ce cas si l'on augmente la taille du faisceau d'un facteur 10, la probabilité de ne pas avoir d'endommagement est de  $0.5^{10} = 0.1\%$ . Par ailleurs, des expériences menées en utilisant comme définition du seuil la plus grande énergie ne provoquant aucun endommagement (seuil bas) ont montré l'indépendance du seuil en fonction de la taille du spot (expériences de Foltyn[27] sur des couches minces). Ainsi, connaissant ce seuil bas sur des petites surfaces, on connaît théoriquement la tenue au flux de composants de grandes tailles. Toute la difficulté est de déterminer avec précision ce seuil bas, notamment dans le cas où les défauts limitants ont une densité très faible.

Pour mesurer avec précision le seuil bas de matériaux présentant des défauts faiblement distribués, plusieurs équipes ont choisi récemment d'utiliser la méthode de raster scan [92, 9]. Ainsi toute la surface de l'échantillon est testée et tout point faible est repéré.

Toutefois si l'on considère que les défauts ne réagissent pas indépendamment les uns des autres sous flux, il est plus difficile de prévoir la tenue au flux d'une grande optique. En effet, si deux défauts voisins collaborent au processus d'endommagement, ils peuvent former ainsi un défaut différent, de seuil plus bas [34].

Cette hypothèse s'appliquerait au cas des couches minces, ayant des densités de défauts élevées. Au niveau des morphologies, l'action de plusieurs défauts contribuerait aux délaminations observées lors de l'utilisation de larges faisceaux.

## 2.3 Dispositif expérimental

Le banc d'endommagement de l'Institut Fresnel a été créé en 1996, et a été développé au cours de la thèse de P. Volto [1]. Nous allons tout d'abord décrire ce dispositif tel qu'il était en 1999 à la fin de cette thèse, puis présenter le travail qui a été effectué pour améliorer ses performances.

### 2.3.1 Originalités du dispositif

Le dispositif de l'Institut Fresnel se démarque de la plupart des dispositifs existant car il permet notamment :

- Une observation "temps réel" de la surface grâce à un microscope optique placé derrière l'échantillon sur l'axe optique. La détection de l'endommagement laser est alors dynamique et se fait avec une grande sensibilité. Ce système fournit également des informations sur le processus d'endommagement (éjection de matière, délamination, ...).
- Une étude spatiale localisée via l'utilisation de faisceaux de petites dimensions (quelques dizaines de microns). Il est ainsi possible de distinguer, sur différents matériaux, les seuils de tenue au flux "intrinsèques" (zone exempte de défauts visibles au microscope) des seuils extrinsèques. Ainsi le rôle des défauts "extrinsèques" a été clairement identifié [33].
- L'utilisation conjointe d'un faisceau de petite dimension et d'un microscope équipé d'objectifs à longue distance de travail permet d'étudier la tenue au flux surfacique et volumique des composants massifs grâce à un simple déplacement du point de focalisation.

### 2.3.2 Présentation du dispositif expérimental initial

La source utilisée est un laser Nd :YAG impulsionnel. Sur le trajet du faisceau laser, deux lames de prélèvement permettent de mesurer respectivement le profil spatial du faisceau non focalisé et l'énergie incidente. La première lame de prélèvement est également utilisée pour aligner un laser He-Ne sur le trajet du faisceau YAG. Les deux faisceaux sont ensuite focalisés à la surface de l'échantillon. Ce dernier peut être déplacé manuellement horizontalement et verticalement. Les endommagements sont détectés grâce à un microscope placé sur l'axe optique du banc, permettant de visualiser par l'arrière et en "temps réel" la zone irradiée de l'échantillon (figure 2.2).

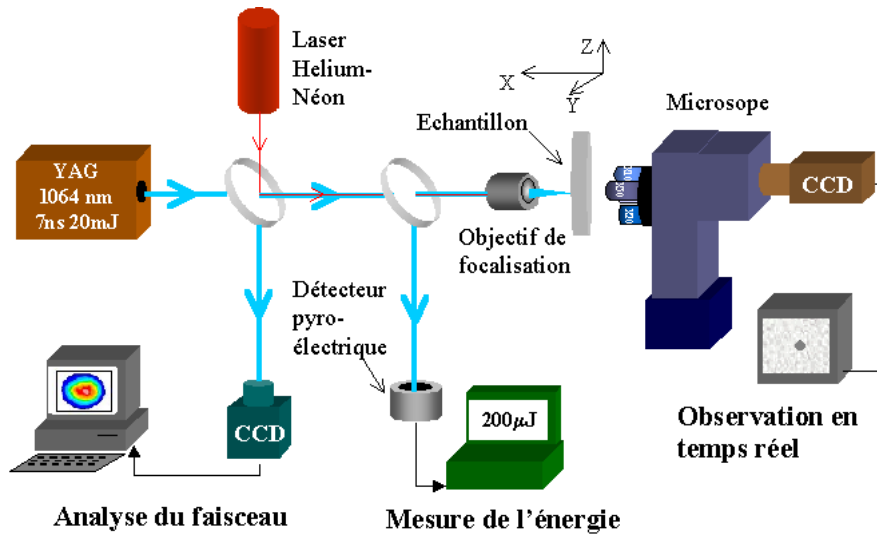


FIG. 2.2 – Dispositif expérimental de tenue au flux en début de thèse

### Le laser Nd :YAG

Il s'agit d'un laser "New Wave Research" émettant à 1064nm des impulsions de durée 7ns, et pouvant fonctionner en déclenchement manuel ou en cadence entre 1 et 20 Hz. Un atténuateur de type polariseur croisé permet de faire varier l'énergie. Le faisceau en sortie est polarisé rectilignement.

Nous verrons par la suite que ce laser a été remplacé au cours de la thèse.

### Le détecteur pyroélectrique

Le détecteur pyroélectrique utilisé est de marque COHERENT. Il se compose d'une console (référence : LabMaster Ultima) et d'une tête de détection (référence : LM P2-09). La surface du détecteur est de  $81\text{mm}^2$  et celle du faisceau laser est de  $6\text{mm}^2$ . Ses caractéristiques sont décrites dans le tableau 2.3.

Réponse spectrale	0.19 à 10.6 $\mu\text{m}$
Précision	5%
Énergie maximale mesurable	3mJ
Énergie minimale mesurable	5 $\mu\text{J}$
Seuil d'endommagement	10 $\text{mJ}/\text{cm}^2$

TAB. 2.3 – Caractéristiques du détecteur pyro-électrique LMP2-09

Le fonctionnement de ce type de détecteur, basé sur la variation de la polarisation électrique du Titanate de Baryum  $\text{BaTiO}_3$  avec la température, permet



des temps de réponse bien plus courts que les détecteurs thermiques ordinaires, car le temps de montée est inférieur au dixième de ms. Il est alors possible de mesurer avec précision l'énergie de chaque tir à des fréquences de travail de 20Hz.

### Le microscope optique

Le microscope utilisé (de référence Olympus BX30) est équipé d'objectifs à longue distance de travail qui permettent de réaliser une observation à une distance objectif-objet de plus de 1cm. Grâce à cette configuration, il est possible d'observer la face avant d'un échantillon de plusieurs millimètres d'épaisseur, à travers un filtre absorbant la longueur d'onde du laser (photographie du montage figure 2.3). Ce microscope possède 4 objectifs (X5, X10, X20, et X50), 2 oculaires (X10) et un doubleur de focale (X2). Le grossissement maximal possible est de 1000, avec un champ d'observation minimal de 220 microns. Une caméra CCD (8bit, 752X582 pixels), très sensible (0.02lux), permet une observation aisée des faces avant, arrière et du volume de l'échantillon.

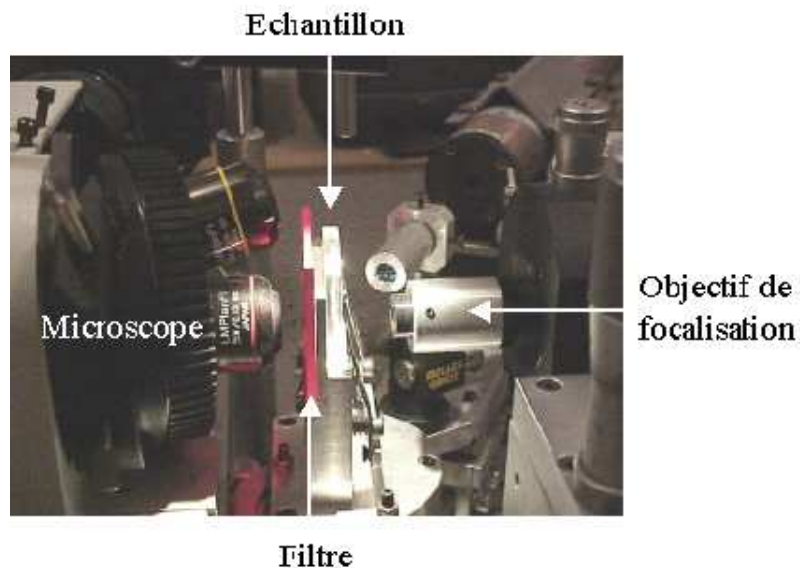


FIG. 2.3 – Vue du montage permettant l'observation de l'échantillon irradié

Différents modes d'observation sont disponibles :

- L'observation en champ clair : La surface de l'échantillon est éclairée en lumière blanche directement à travers l'objectif et en incidence normale. L'image est formée à partir de la réflexion de la lumière sur la surface. La résolution verticale et horizontale, limitée par le phénomène de diffraction,

dépend de l'ouverture numérique de l'objectif utilisé. Elle est de l'ordre de la longueur d'onde d'observation pour les meilleurs objectifs.

- L'observation en champ sombre : La surface de l'échantillon est éclairée en incidence oblique. L'image n'est plus formée à partir du faisceau réfléchi mais à partir de la lumière diffusée par l'échantillon. Ce système permet notamment la détection de défauts isolés diffusants.
- L'observation par procédé Nomarski ou contraste interférentiel : ce mode utilise l'interférométrie pour mettre en évidence la différence de chemin optique entre deux points de la surface (variation d'indice et/ou d'épaisseur). Cette technique très sensible permet d'observer des variations d'épaisseur de l'ordre du nanomètre.

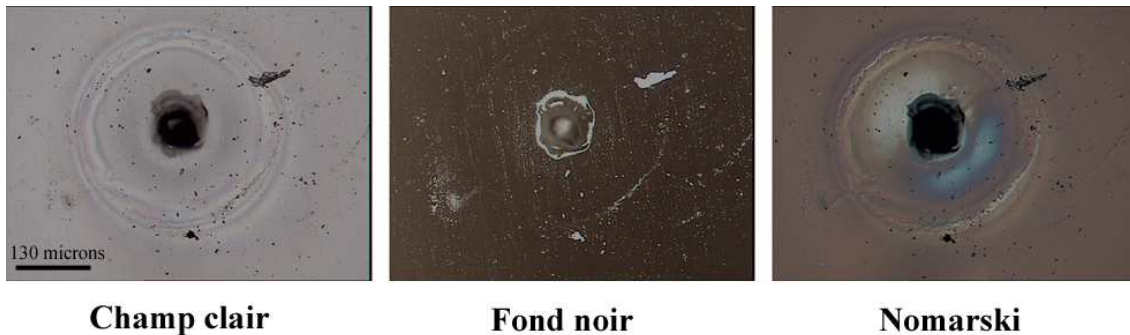


FIG. 2.4 – Images d'un endommagement prise dans les différents modes de fonctionnement du microscope

### L'analyseur de faisceau

Une caméra CCD associée à une carte d'acquisition vidéo permet d'imager le faisceau direct du laser. Ce dispositif ayant été complètement modifié, il ne sera pas décrit dans cette partie.

### 2.3.3 Evolution du dispositif

Le banc de mesure a été amélioré, de façon à pouvoir effectuer des mesures précises et automatiques, en associant à chaque tir un contrôle rigoureux des paramètres du faisceau laser. Le dispositif expérimental final est décrit figure 2.5.

#### Lasers

Le laser New Wave a été remplacé. Deux lasers pulsés Nd :YAG de marque Quantel sont maintenant alignés sur le banc, nous permettant d'utiliser trois longueurs d'ondes :  $\omega$  (1064nm),  $2\omega$  (532nm) ou  $3\omega$  (355nm). Un troisième laser

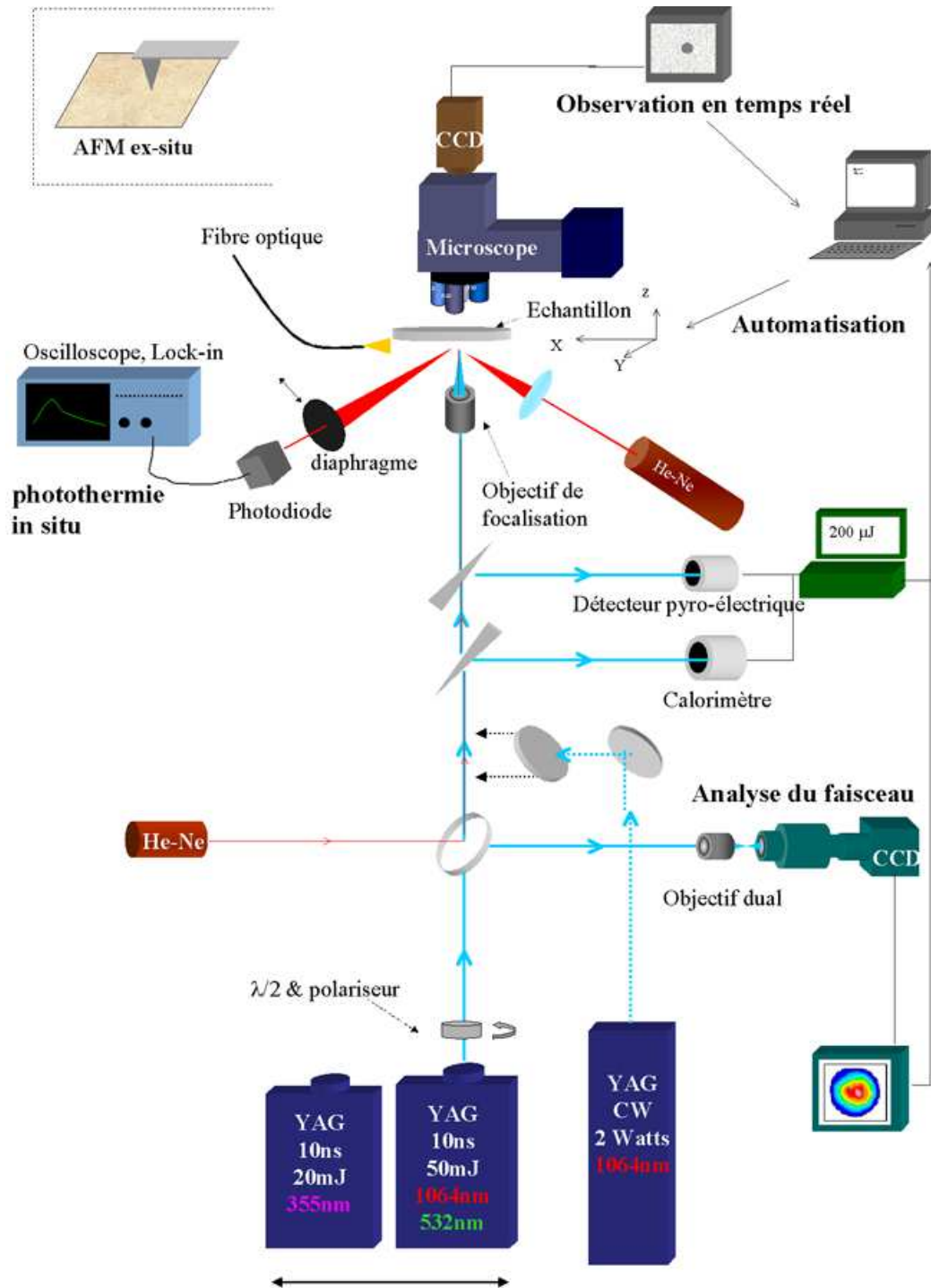


FIG. 2.5 – Dispositif expérimental de tenue au flux final

YAG continu est également disponible afin d'effectuer des mesures d'endommagement et de photothermie in-situ à 1064nm. Les caractéristiques constructeur

de ces différents lasers sont données dans le tableau 2.4.

	Laser		
	Quantel $\omega$	Quantel $3\omega$	Continu
Longueur d'onde	1064 nm, 532 nm (doublage externe)	355 nm	1064 nm
Pulse	7ns	6,2ns	
Fréquence de répétition	1 à 20 Hz	1 à 20 Hz	
Energie/Puissance	50 mJ à 1064 nm 5 mJ à 532 nm	10mJ	2W
Polarisation	linéaire	linéaire	linéaire

TAB. 2.4 – Caractéristiques des différents lasers

L'énergie des lasers est contrôlée par un atténuateur variable ex-situ afin de travailler à l'énergie maximum du laser. Cet atténuateur est constitué d'une combinaison lame  $\lambda/2$ -polariseur, permettant également de faire varier la polarisation. Il est monté sur une platine motorisée, contrôlée par PC via un module de gestion des moteurs (Référence Microcontrôle MM4006).

De plus, un support barillet comportant différentes gammes de densités a été installé sur le trajet du faisceaux YAG pour changer les gammes d'énergie, qui peuvent être très différentes suivant les matériaux à tester.

### Mesure de l'énergie

Dans le but d'éviter des erreurs de mesures résultant d'une dérive de la réponse du détecteur pyroélectrique, un calorimètre (référence : Coherent LM1) a été installé sur une deuxième voie de référence.

Le détecteur pyroélectrique donne une valeur d'énergie pour chaque tir, le calorimètre en moyennant plusieurs tirs nous permet de contrôler l'exactitude de ces valeurs.

Le transfert des valeurs d'énergie de la console Labmaster au PC est assuré par une liaison RS232.

### Analyseur de faisceau

L'analyseur de faisceau a été modifié de façon à imager le faisceau focalisé, ce qui permet :

- d'associer à chaque tir sur l'échantillon le profil du faisceau correspondant et d'enregistrer ce profil pour d'éventuelles mesures AFM
- de mesurer avec précision les paramètres du profil spatial
- de contrôler la stabilité du laser en temps réel

Pour cela, une partie du faisceau laser est prélevée et analysée grâce à un microscope associé à une caméra CCD (8 bit, 756\*581 pixels, sensibilité : 3lux).

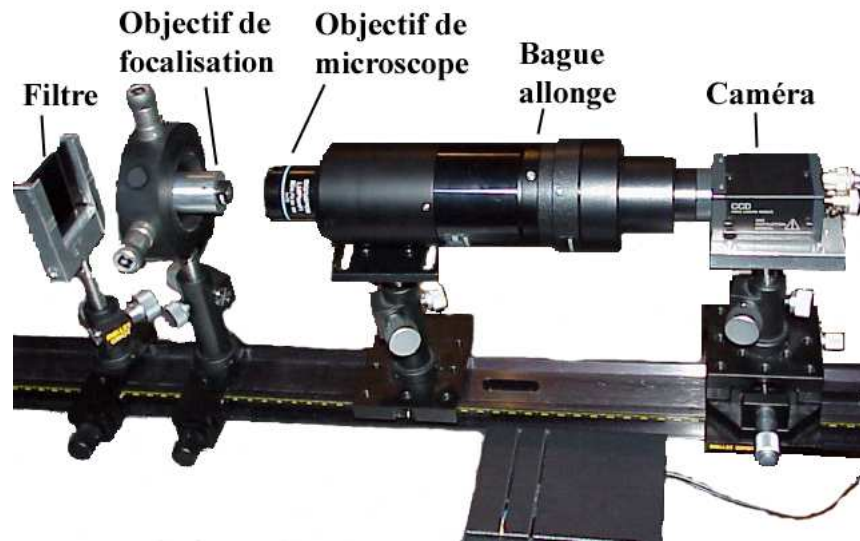


FIG. 2.6 – Dispositif de prise d'image du faisceau

L'objectif utilisé pour focaliser le faisceau est le même que celui utilisé pour tester l'échantillon (figure 2.6). Le faisceau est focalisé à une distance du laser équivalente à la distance laser/échantillon. Différents objectifs de microscope permettent d'ajuster le champ à la taille du faisceau visualisé. La résolution obtenue sur l'image avec le plus fort grossissement est de 6 pixels pour 1 micron. Une carte vidéo permet d'acquérir ces images, pour les stocker et les analyser.

Un programme développé sous Labview permet d'exploiter les images obtenues pour effectuer les mesures suivantes :

- ajustement du faisceau par une Gaussienne
- maximum d'énergie et position
- position de la centroïde
- Energie totale en niveau de pixels

L'interface utilisateur de ce programme est présenté figure 2.7.

### Automatisation

Outre le gain de temps, l'avantage majeur de l'automatisation est de s'affranchir autant que possible du côté subjectif de l'expérimentateur, ce qui permet de gagner en répétabilité.

L'ensemble du dispositif de mesure a donc été automatisé. Un logiciel développé sous Labview permet de gérer l'ensemble des actions (description figure 2.8).

On peut souligner que l'ensemble de ces actions séquentielles (acquisition d'image, déplacement en X-Y, tir, acquisition du profil spatial, acquisition d'image après tir, analyse d'image) a été optimisé pour fonctionner à des fréquences de

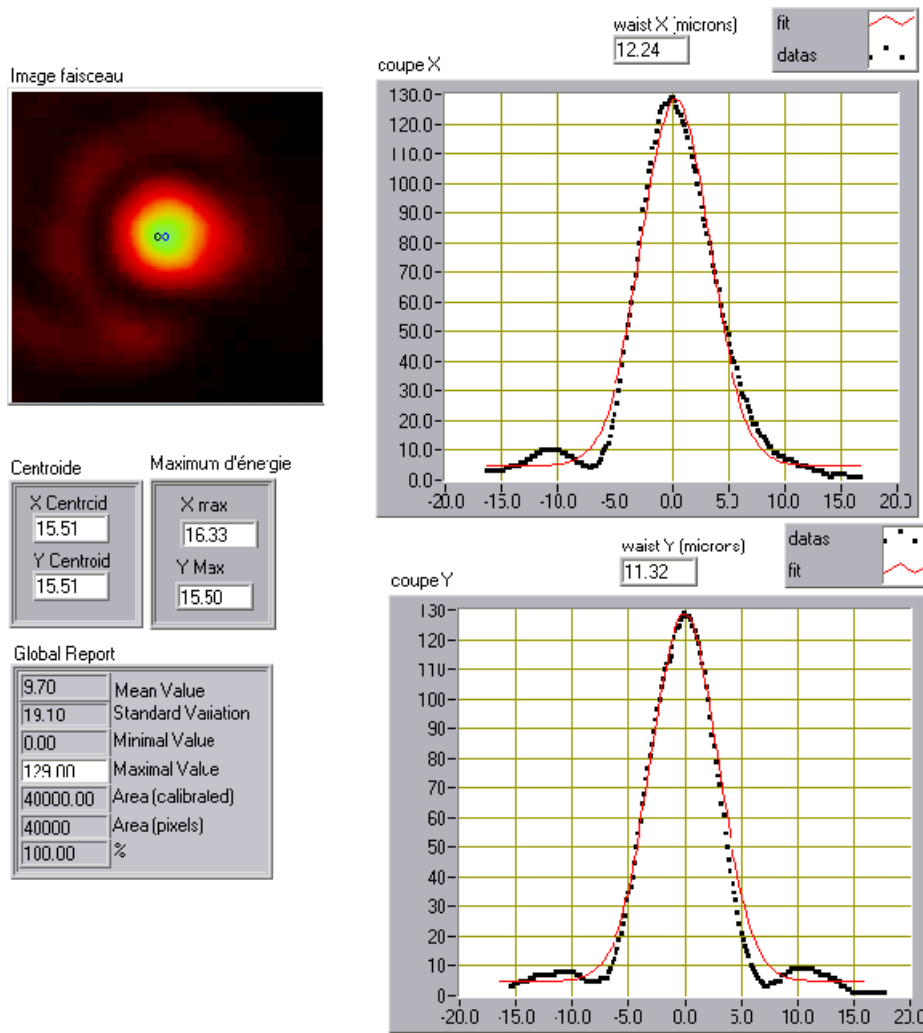


FIG. 2.7 – Interface du programme d'analyse de faisceau

tir de 20 Hz, qui est la fréquence de répétition maximale du laser.

L'automatisation a également été adaptée à l'étude des endommagements dans les liquides. Dans ce cas, la détermination du claquage se fait via l'onde acoustique récupérée par un microphone (voir partie 2.4.3).

### Photothermie in-situ

Pour renforcer les moyens de diagnostics non destructifs sur le banc de mesure, une expérience de photothermie in-situ fonctionnant en régime pulsé a été montée. Elle sera décrite en détail dans la partie ??.

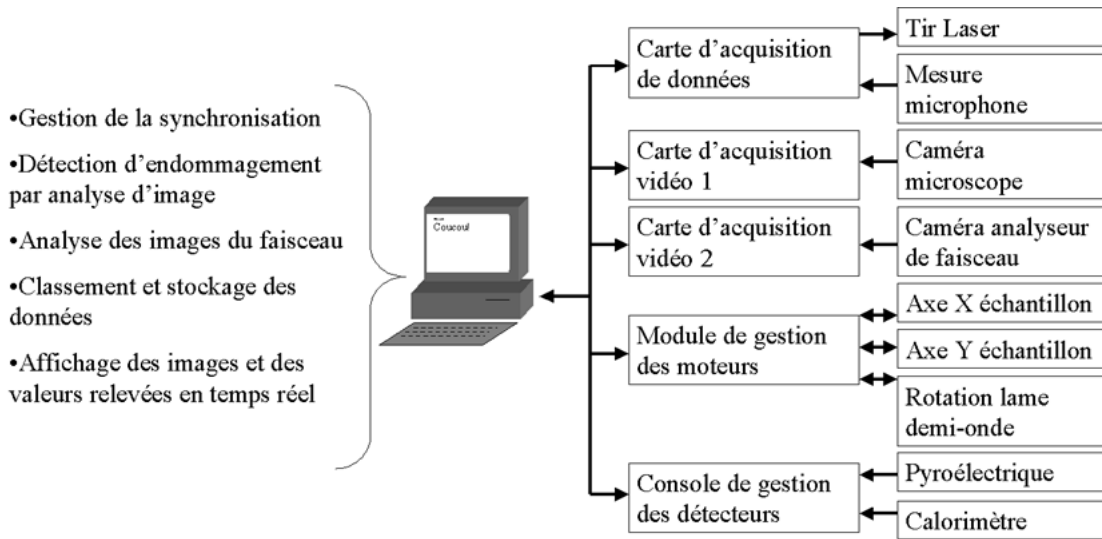


FIG. 2.8 – Contrôles/commandes pilotés par le logiciel d'automatisation

### 2.3.4 Avantages du nouveau dispositif

- **Souplesse** : Différents types de tests peuvent être utilisés facilement pour caractériser l'endommagement (procédures 1-on-1, R-on-1, S-on-1). Le passage aisé d'un type de test à l'autre donne l'opportunité d'effectuer des comparaisons entre ces différentes procédures de test. Grâce à cette souplesse du dispositif, nous pouvons tester l'influence de paramètres tels que le pas entre chaque site testé, la fréquence de tir, le nombre de sites testés... Remarquons qu'il est également possible de réaliser une cartographie d'endommagement, ou de se repositionner avec précision sur un échantillon testé sur un autre banc.
- **Contrôle** : Le profil spatial du faisceau focalisé est associé à chaque tir. Cette mesure systématique permet de déterminer la densité d'énergie focalisée pour chacun des tirs laser, et de vérifier que les caractéristiques du laser ne varient pas au cours du temps. Si tel était le cas il serait possible grâce à la sauvegarde des images de retraiter les résultats obtenus en conséquence.
- **Précision** : La finesse de la détection permet de repérer des endommagements inférieurs au microns.
- **Rapidité** : Le test d'un échantillon en mode 1-on-1 qui comprend dans nos tests "classiques" 30 sites testés à 30 énergies différentes, soit 900 points de mesures, s'effectue approximativement en 30 minutes. La vitesse est ici limitée par les communications ordinateurs/périphériques lentes (RS232). L'absence d'opérateur permet également de pouvoir effectuer des mesures de tenue au flux avec des milliers d'irradiations sur une même zone.
- **Sauvegarde des images** : L'enregistrement systématique des images per-

met de réaliser, si besoin est, une étude à posteriori. Par exemple, sur la figure 2.9, un endommagement sur une silice, analysé par AFM, révèle la présence de deux cratères. Après comparaison avec le profil du faisceau correspondant figure 2.9, il apparaît que cette morphologie particulière était due à une défaillance du laser, et non comme on aurait pu le croire à la révélation d'un défaut.

Il est également possible grâce aux différentes images de pouvoir suivre la croissance des endommagements lors de tirs répétés.

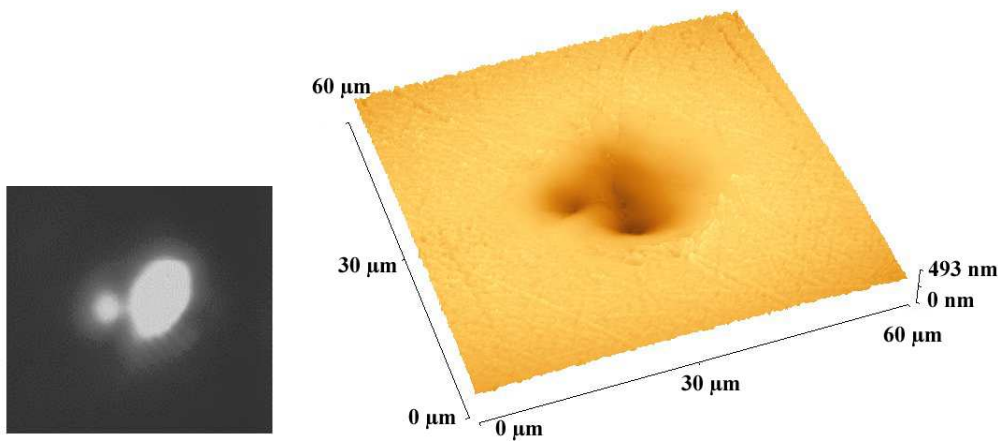


FIG. 2.9 – Image AFM d'un endommagement sur la surface d'une silice et profil du faisceau focalisé correspondant (diagnostic d'erreur)

## 2.4 Détection de l'endommagement laser

La détection d'endommagement est le point clé d'un dispositif de mesure de tenue au flux. Notre but est de détecter automatiquement toute modification irréversible du matériau, conformément à la définition de l'endommagement explicitée dans la partie 1.4. La détection de l'endommagement étant liée au moyen d'observation, nous effectuerons tout d'abord une comparaison des différentes techniques de détection existantes, puis nous présenterons les méthodes qui ont été développées.

### 2.4.1 Comparaison des différentes méthodes existantes

- Pour la détection d'endommagement, les principales techniques utilisées sont :
- La mesure des variations de diffusion d'un laser sonde [74, 75, 73, 81]
  - La détection d'un signal acoustique [93, 81, 94, 95]
  - La mesure de variations de transmission à travers l'échantillon [77]



- La détection par microscopie optique [76, 96]

### **Mesure de variations de diffusion lumineuse**

Un laser sonde (en général un Helium-Néon) éclaire la zone irradiée de l'échantillon. La lumière diffusée par l'échantillon est alors collectée par un détecteur, généralement positionné de manière à intégrer le maximum de signal sur un grand angle solide. Une variation du signal de diffusion après tir est alors interprétée comme un endommagement.

Cette technique est la plus souvent utilisée pour la détection en ligne. D'une part pour sa simplicité de mise en œuvre, et d'autre part pour sa dynamique adaptée à une utilisation à des cadences de tir élevées.

### **Détection d'un signal acoustique**

L'endommagement d'un matériau peut créer une onde de choc se propageant dans le matériau et dans le milieu environnant. Cette technique est basée sur la détection de ce signal. Il peut être soit détecté à l'aide d'un capteur piézoélectrique fixé sur l'échantillon, soit par une mesure de déflexion photoacoustique d'un laser sonde.

### **Mesure de variation de transmission optique**

L'obscurcissement par un endommagement d'un faisceau sonde ou du faisceau d'irradiation est utilisé pour détecter l'endommagement. La mesure de transmission est cependant moins sensible que la mesure de diffusion.

### **Microscopie optique**

L'échantillon est observé avant et après tir au microscope optique, in-situ ou ex-situ, pour détecter un éventuel changement. C'est la technique la plus sensible, notamment en utilisant un microscope de type Nomarski. Des endommagements inférieurs au micron, ou une modification de l'indice du matériau peuvent être détectés. De plus une information qualitative et quantitative peut être obtenue, fournissant des informations sur le processus d'endommagement.

### **Avantages et inconvénients**

Les techniques de mesure de diffusion ou de transmission présentent l'avantage d'être simples à mettre en œuvre et d'avoir une dynamique adaptée à des fréquences de tirs élevées. Cependant peu d'informations intéressantes pourront être obtenues sur l'endommagement (forme, taille, . . .). Cette remarque est également valable pour la technique de détection d'un signal acoustique. La technique

de microscopie, quant à elle, permettra d'obtenir des informations sur la morphologie des endommagements. De plus des artefacts de mesures comme l'éjection de poussières pourra être évitée.

La détection par microscopie est donc la plus adaptée à notre étude, puisque l'on cherche à détecter l'apparition de l'endommagement avec une grande finesse et à comprendre les mécanismes en analysant les morphologies. Cette méthode a donc été choisie, malgré sa lourdeur à mettre en œuvre.

### 2.4.2 Développement d'une méthode de détection automatique par analyse d'image

#### Description et performances

La détection d'endommagement est réalisée par comparaison des images avant tir et après tir laser. L'algorithme basé sur une soustraction pixel par pixel des images est décrit figure 2.10. L'image finale est une image binaire, le critère d'endommagement étant l'apparition de pixels blancs dans cette image.

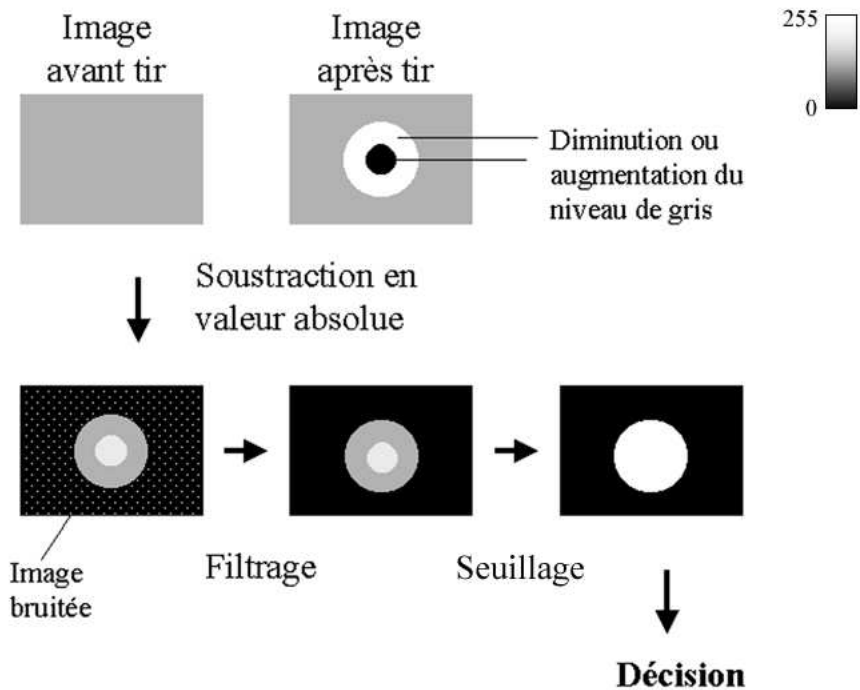


FIG. 2.10 – Algorithme d'analyse d'image pour la détection d'endommagement

Les paramètres de l'algorithme sont ajustés si des changements de luminosité interviennent lors du test d'un nouveau matériau, ou bien si l'objectif ou le mode de fonctionnement (fond clair ou fond noir) est changé.

Le programme développé permet de travailler à des fréquences de répétition du

laser de 20 Hz, lors de tests de tenue au flux multicoups. Ce travail en temps réel permet de stopper le laser dès l'apparition du premier endommagement, évitant ainsi toute pollution inutile de l'échantillon qui pourrait être due à la croissance de l'endommagement et permettant également un gain de temps.

La procédure de test décrite peut être appliquée aussi bien aux volumes qu'aux surfaces, avec une résolution inférieure au micron lorsque le plus fort grossissement est utilisé (X1000). Des exemples d'applications pour un volume de silice et pour une surface traitée sont donnés figures 2.11 et 2.12.



FIG. 2.11 – Détection d'endommagement dans le cas d'un volume (Image avant tir, après tir, et résultat du traitement)

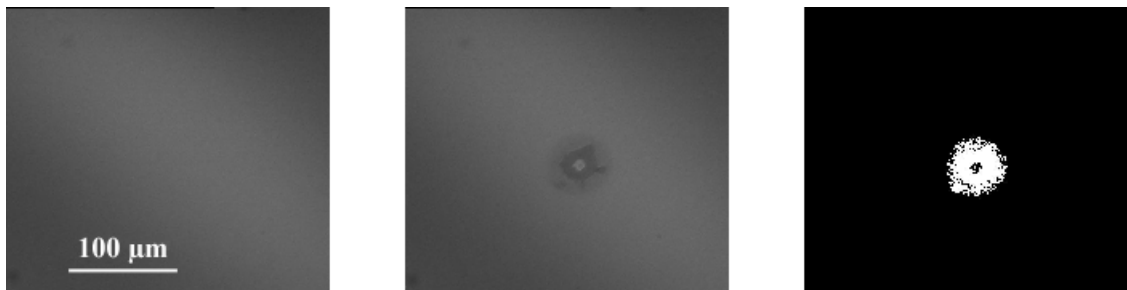


FIG. 2.12 – Détection d'endommagement dans le cas d'une surface traitée (Image avant tir, après tir, et résultat du traitement)

### Limitations de la méthode

La figure 2.13 présente les conséquences d'un tir sur un défaut visible, présent sur la surface d'une silice. Ce défaut a été éjecté sans créer d'endommagement sur cette surface, mais le résultat est interprété comme un endommagement par le système. La méthode de détection utilisée atteint alors ses limites dans ce cas. Notons que le même problème aurait été rencontré avec l'utilisation d'un autre moyen de détection. Toutefois la probabilité de tirer sur une poussière est faible, et si le système de détection automatique ne permet pas de s'affranchir de cet

artefact de mesure, la visualisation a posteriori des images enregistrées correspondant à des points douteux permet de l'éliminer. Le rajout d'un système de détection de poussière par traitement d'image permettra de s'affranchir de ce problème dans le futur. Notons dans tous les cas que ce problème ne se pose pas pour les études en volume.

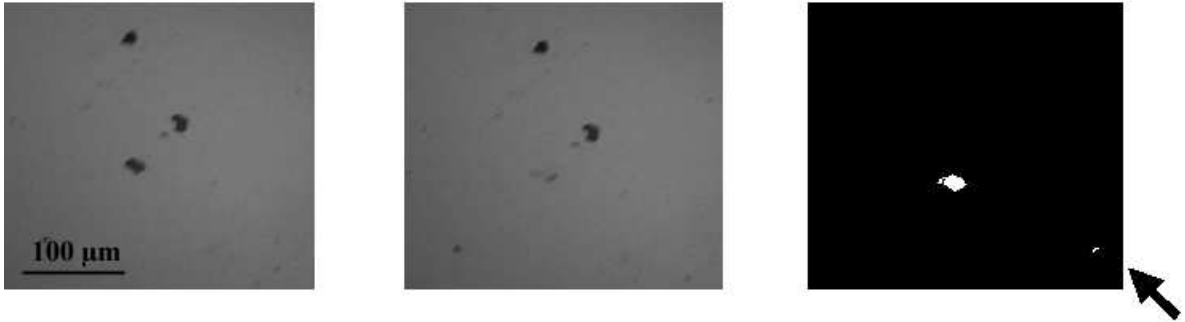


FIG. 2.13 – Tir sur un défaut extrinsèque (Image avant tir, après tir, et résultat du traitement)

La sensibilité du système peut être appréciée figure 2.13. En effet, l'image après traitement révèle qu'un défaut extrinsèque très petit (pointé par la flèche) et situé en dehors de la zone irradiée, a été éjecté par l'onde de choc. Une visualisation par l'opérateur n'aurait pas permis de détecter ce fait.

### Application possible au contrôle de la croissance d'endommagements lors de tirs répétés

La croissance des endommagements constitue une étude à part entière, car c'est le plus souvent ce qui va conduire à la dégradation de qualité du composant [97]. Un des avantages du dispositif présenté est la visualisation en temps réel et le stockage systématique des images correspondant à chacun des tirs. Dans ce cas il est possible de suivre avec précision chaque étape d'un processus de croissance d'endommagement lors de tirs répétés sur une même zone (voir figure 2.14 et partie 4).

Les méthodes acoustiques et de diffusion utilisées dans ce but [81] ne permettent pas le contrôle quantitatif qui est obtenu dans notre cas.

### 2.4.3 Détection automatique de claquage appliquée aux liquides

Pour les besoins d'études dans des liquides (voir section 3.3) le dispositif a été adapté. Le claquage dans ce type de matériau est caractérisé par la forma-

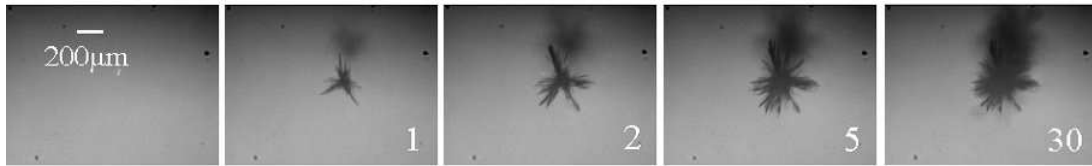


FIG. 2.14 – Croissance d'un endommagement dans le volume d'un verre de BK7 soumis à des tirs répétés

tion d'un plasma et la propagation d'une onde acoustique [72, 98, 96]. Ces deux phénomènes apparaissant simultanément, la détection d'une onde acoustique a été choisie, pour des raisons de commodité, comme critère d'endommagement. La détermination du claquage se fait via l'onde acoustique récupérée par un microphone placé au dessus de l'éprouvette contenant le liquide, comme le décrit l'image 2.15. Ce microphone est relié à une carte d'acquisition du PC, permettant d'utiliser les procédures de tests automatiques.

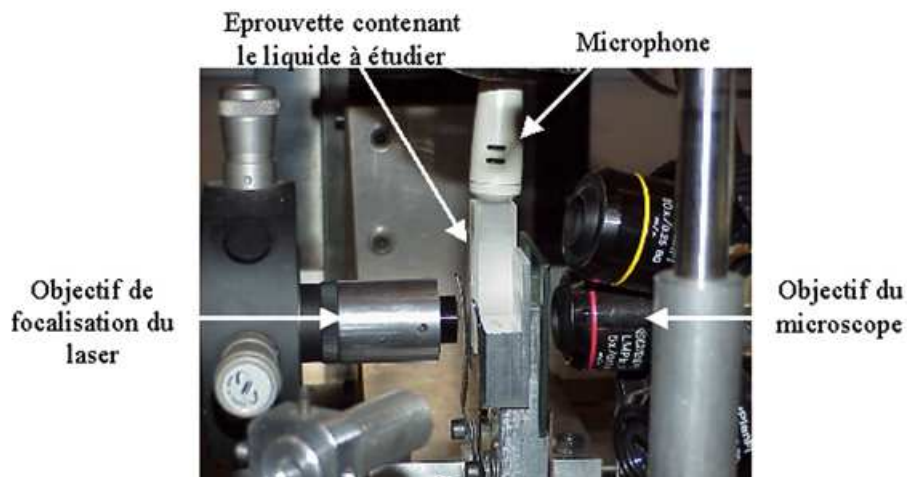


FIG. 2.15 – Configuration spécifique pour l'étude de l'endommagement dans des liquides

## 2.5 Contrôle rigoureux des conditions de tir

L'étude de l'endommagement requiert un laser de test très stable et des caractéristiques parfaitement connues. En effet, des variations du profil temporel ou spatial du faisceau peuvent avoir des conséquences directes sur les valeurs de seuil obtenues [79, 99]. Une caractérisation complète des lasers utilisés est donc présentée dans cette partie.

### 2.5.1 Stabilité en énergie

L'énergie est enregistrée pour chaque tir grâce au détecteur pyro-électrique. Il est ainsi possible de mesurer la stabilité du laser pour chaque longueur d'onde et pour chaque fréquence d'utilisation. Les campagnes de mesures ont été effectuées sur des séries de 1000 tirs. Le détail des mesures est donné en annexe B, les résultats sont résumés dans le tableau 2.5. Remarquons que lorsque l'on augmente la fréquence de tir, on observe une instabilité du laser lors des premiers tirs. Nous verrons plus loin que l'on pourra exclure ces tirs grâce à la mise en place d'un obturateur. Ce régime transitoire n'est donc pas pris en compte dans le tableau 2.5

$\lambda$ \ Fq.	1Hz	10Hz	20Hz
1064nm (laser 1)	$\sigma = 1.2\%$	$\sigma = 1.1\%$	$\sigma = 2.0\%$
532nm (laser 1 doublé)	$\sigma = 2.2\%$	non mesuré	non mesuré
355nm (laser 2)	$\sigma = 3.8\%$	$\sigma = 4.2\%$	$\sigma = 6.1\%$

TAB. 2.5 – Stabilité des lasers en énergie : écart type normalisé. Ces statistiques ont été effectuées sur 1000 tirs

### 2.5.2 Contrôle du profil spatial

L'analyseur de faisceau et le logiciel développé correspondant (description en 2.3.3) permettent d'effectuer un contrôle des paramètres du faisceau à différentes fréquences d'utilisation. Il est notamment important de quantifier les variations de la forme du faisceau. Il est également nécessaire de vérifier que le faisceau ne dépointe pas lors de tirs cumulés sur un même site.

#### Waist

Le waist est obtenu à partir du profil du faisceau focalisé ajusté par une gaussienne. Le tableau 2.6 regroupe les valeurs obtenues à différentes fréquences de tirs et longueurs d'onde, pour des faisceaux focalisés sur une dizaine de microns. Les mesures complètes se trouvent en annexe B.

#### Dépointage

Les dépointages mesurés du faisceau sont reportés en annexe B. Les valeurs obtenues de 1 Hz à 15 Hz pour les différentes longueurs d'ondes sont suffisamment

	1Hz		10Hz		20Hz	
	waist moyen	écart type	waist moyen	écart type	waist moyen	écart type
1064nm						
Objectif MG laser Quantel $\omega$	12.07 $\mu m$	2,1%	12.74 $\mu m$	5,3%	14.59 $\mu m$	6.4%
532nm						
Objectif MG laser Quantel $\omega$	5.81 $\mu m$	2,3%	6.24 $\mu m$	3.1%	9.77 $\mu m$	12,3%
355nm						
Objectif UV laser Quantel $3\omega$	8.79 $\mu m$	2,0%	non. mes.	non. mes.	non. mes.	non. mes.

TAB. 2.6 – Stabilité spatiale des lasers : mesure moyenne du waist sur 1000 tirs et écart type normalisé correspondant( $\sigma$ )

stables pour effectuer des études en tir cumulé (2 à 3  $\mu m$  de dépointage). Par contre, à 20 Hz, le laser Quantel  $\omega$  présente une augmentation de la taille du faisceau, associé à un fort dépointage durant les premiers tirs (voir figure 2.16), suivi d'une stabilisation. Ce problème dû à un échauffement du laser, est éliminé grâce à un obturateur piloté par le PC, qui a été rajouté sur le banc.

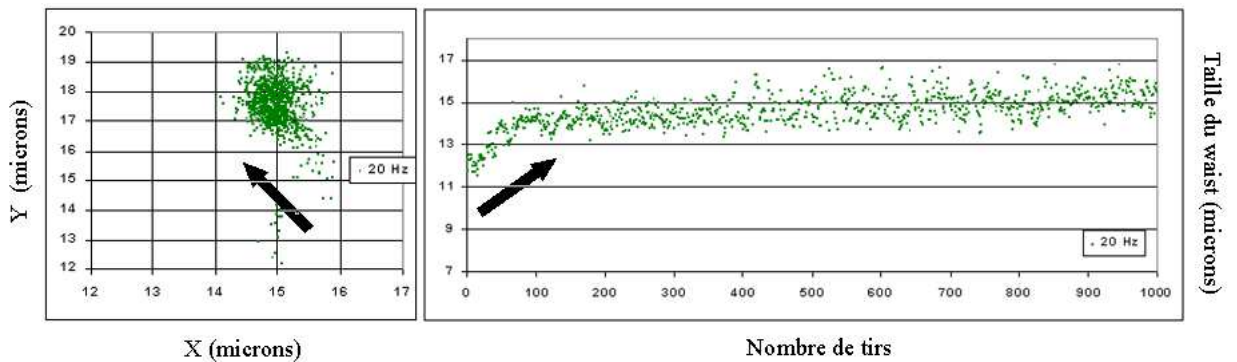


FIG. 2.16 – Mise en évidence d'un dysfonctionnement du laser à 20Hz lors des premiers tirs

### 2.5.3 Surface équivalente du faisceau laser

Les courbes de seuil font intervenir en abscisse l'axe des fluences, qu'il nous faut définir avec précision. La fluence  $F$  désigne la densité d'énergie par unité de surface, qui est une grandeur locale. Dans le cas de faisceaux gaussiens, celle-ci a été souvent donnée en tant que valeur moyenne  $\overline{F}$ , égale à l'énergie totale reçue

par l'échantillon (notée  $E_T$ ), divisée par la surface du spot à  $1/e^2$ . Cependant, la rigueur voudrait que l'on définisse comme abscisse, à la place de la fluence  $\overline{F}$ , la valeur maximum de  $F$  que nous noterons  $F_M$  (cf figure 2.17). C'est pourquoi les courbes de seuils présentées par la suite auront comme axe des abscisses la densité d'énergie maximale du faisceau.

La détermination précise de cette quantité d'énergie déposée sur l'échantillon n'est pas immédiate. En effet, les faisceaux utilisés ne sont pas parfaits : la forme de l'impulsion peut s'éloigner de la Gaussienne théorique, et une partie non négligeable de l'énergie peut se retrouver en dehors du pic principal. Cependant la connaissance de la répartition spatiale du faisceau nous permet d'effectuer une correction afin d'estimer la densité d'énergie réelle vue par l'échantillon.

En effet, dans le cas d'un faisceau Gaussien idéal, la relation entre l'énergie totale  $E_T$  (en J) et  $F_M$  (en  $J/cm^2$ ) est :

$$E_T = F_M \pi r^2 \quad (2.1)$$

où  $r$  est le rayon à  $1/e$ . L'énergie  $E_T$  peut être mesurée sur le détecteur, le rayon quant à lui est déterminé à partir d'un ajustement par une Gaussienne du profil du faisceau. Cette méthode est l'approche classique pour déterminer la densité d'énergie. Or, dans le cas réel de notre laser, le faisceau est quasiment Gaussien au centre mais une partie de l'énergie se retrouve dans les pieds du faisceau (figure 2.17). L'utilisation de la formule 2.1 aboutira alors à une surestimation de la densité d'énergie.

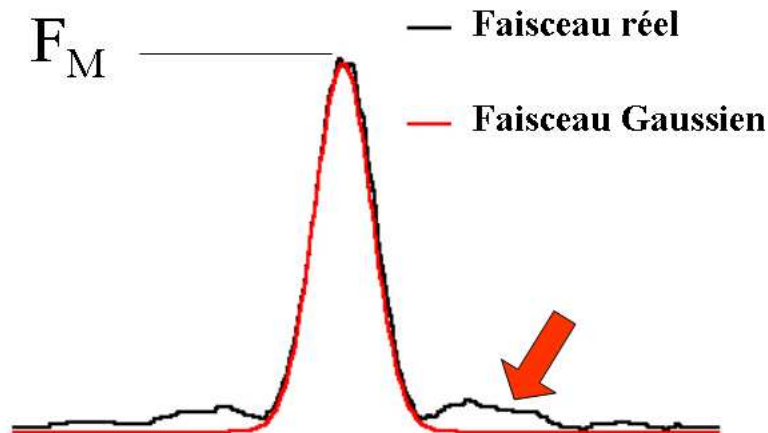


FIG. 2.17 – Comparaison du profil réel du faisceau focalisé et de son ajustement par une Gaussienne. Le rayon à  $1/e^2$  de ce faisceau est de  $12\mu m$ . La flèche met en évidence l'énergie présente dans les pieds.

Pour résoudre ce problème, il suffit d'estimer la surface équivalente  $S_{eq}$  liant



$E_T$  à  $F_M$ , et définie dans la norme ISO [2] comme :

$$E_T = F_M S_{eq} \quad (2.2)$$

Cette surface équivalente est déduite de la formule suivante :

$$S_{eq} = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} F(x, y) dx dy}{F_M} \quad (2.3)$$

Une méthode appropriée pour déterminer  $S_{eq}$  est d'analyser l'image du faisceau focalisé, grâce à l'appareillage décrit dans la partie 2.3.3.

$E_T$  est calculé en sommant les valeurs de tous les pixels sur l'image 8 bit, en prenant soin de soustraire le bruit de fond. Quant à la densité d'énergie maximale, elle est donnée par :

$$F_M = E_M / S_{pixel} \quad (2.4)$$

où  $E_M$  est la valeur du pixel où l'énergie est maximum, et  $S_{pixel}$  est la surface d'un pixel sur l'image du faisceau. Nous obtenons donc d'après les équations 2.3 et 2.4 :

$$S_{eq} = E_T \frac{S_{pixel}}{E_M} = [\sum (\text{valeurs des pixel})] \frac{\text{sur face d'un pixel}}{\text{valeur du pixel maximum}} \quad (2.5)$$

L'aire d'un pixel de l'image est déterminée en calibrant l'appareil par l'image d'une mire de taille connue. Elle est de  $0,16\mu m \times 0,16\mu m$  pour l'utilisation d'un objectif X50.

La partie de l'énergie qui est en dessous du niveau de bruit résiduel (du à l'électronique) peut être négligée, du fait de la faible valeur de ce bruit. Typiquement, la valeur moyenne du bruit est de 0,01.

Sur la figure 2.18, nous reportons les calculs de surfaces effectives dans le cas d'un faisceau focalisé sur une dizaine de microns. Ces calculs ont été effectués pour différentes tailles d'images (de 50X50 pixels à 500X500 pixels) afin de trouver la taille d'image optimale à utiliser. Ces résultats sont comparés à l'aire du faisceau mesurée par la méthode classique (trait en pointillés). L'écart type normalisé sur ces valeurs est de 5 à 6% (statistique sur 1000 tirs).

Nous pouvons constater que si la fenêtre utilisée est petite, la surface effective correspond à la surface mesurée par la méthode classique (seul le pic central est dans l'image). Par contre dans le cas d'une fenêtre large, toute l'énergie est prise en compte et les résultats diffèrent d'un facteur 2,6. Ceci souligne l'importance de cette méthode, qui nous permet de tendre vers une valeur plus juste de la densité d'énergie.

Notons que des mesures systématiques seront effectuées pour les différentes tailles de faisceaux utilisés et que les valeurs données par la suite tiendront compte de la correction présentée dans ce paragraphe.

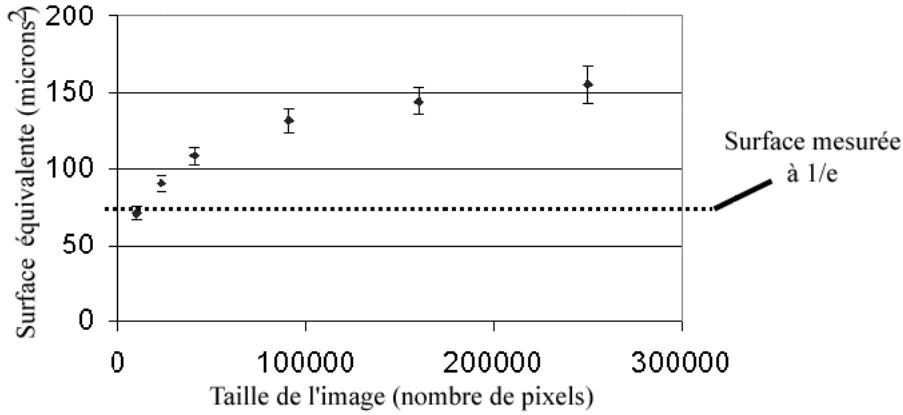


FIG. 2.18 – Mesure de la surface effective d'un faisceau focalisé sur une dizaine de microns.  $\lambda = 1064nm$ . Statistique effectuée sur un millier de tirs

### "Fluence pixel"

La correction sur la densité d'énergie maximum étant effectuée, il est alors aisé de connaître la densité d'énergie en chaque pixel de l'image du faisceau, ce qui peut être d'une grande utilité pour analyser finement les morphologies d'endommagement.

#### 2.5.4 Profil temporel

La dépendance temporelle du seuil d'endommagement à la durée d'impulsion est un phénomène avéré (cf partie 2.2). La durée de l'impulsion doit donc être connue avec précision afin de pouvoir effectuer des comparaisons entre différents bancs de test. De plus, la résolution temporelle de la mesure doit être suffisante pour détecter l'éventuelle présence de pics d'intensité dans le faisceau. Dans notre cas, le laser n'étant pas parfaitement monomode, il existe de tels pics dans le faisceau (figure 2.19).

Les mesures de l'impulsion laser sont effectuées avec un oscilloscope de bande passante 500 MHz et une photodiode à avalanche de temps de montée inférieur à 100ps.

De la même façon que pour le profil spatial, les durées d'impulsion seront données en durée effective de l'impulsion. Cette durée effective est le rapport de l'énergie totale des impulsions sur la puissance maximale des impulsions [2] :

$$t_{eff} = \frac{\int_0^{+\infty} P(t)dt}{P_{max}} \quad (2.6)$$

Le détail des mesures est donné en annexe B et les résultats sont résumés dans le tableau 2.7.

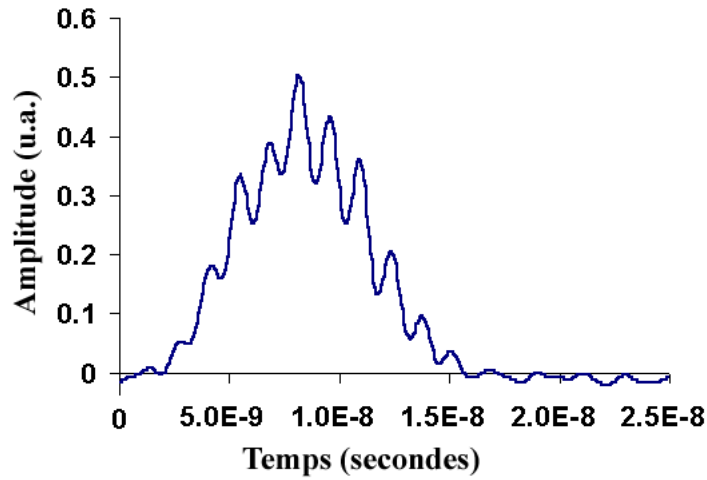


FIG. 2.19 – Mesure résolue d’une impulsion à 355nm

	$t_{eff}$
1064nm	4.9 ns
532nm	non mes.
355nm	6.20 ns

TAB. 2.7 – Durées effectives d’impulsion des lasers à différentes longueurs d’ondes

## 2.6 Optimisation des paramètres de tir

Nous recherchons dans cette partie, un compromis entre le temps d’acquisition des mesures, la précision et la fiabilité. Pour cela nous allons étudier l’influence des paramètres de test sur la mesure.

### 2.6.1 Nombre de tirs

Les courbes de seuil mesurées en mode 1-on-1 sont obtenues en éclairant, à chaque fluence  $F_M$ ,  $N$  régions de l’échantillon. On obtient alors la probabilité d’endommagement par le rapport  $n/N$ , avec  $n$  le nombre de zones endommagées parmi les  $N$  régions testées. Afin de trouver le meilleur compromis entre la précision des courbes et le temps de mesure nécessaire, nous avons étudié la répétabilité de la mesure en fonction du paramètre  $N$ .

La probabilité  $p$  d’endommagement en mode (1 :1) est estimée pour chaque énergie par la probabilité d’événements sur  $N$  régions :

$$p = p(F) \approx p(F, N) = n(F, N)/N \quad (2.7)$$

Par conséquent, l'écart type normalisé sur la mesure est donné par [100] :

$$\sigma_N = \sqrt{\frac{(1-p)}{pN}} \quad (2.8)$$

Des mesures ont été réalisées dans le volume de la silice, pour une densité d'énergie correspondant à une probabilité d'endommagement de 0.5. C'est en effet pour cette probabilité que la pente de la courbe de seuil est la plus importante [1]. Pour cela nous avons fait varier N de 5 à 50, en répétant la mesure 10 fois pour chaque valeur de N. Les résultats sont représentés et comparés aux valeurs théoriques sur la figure 2.20.

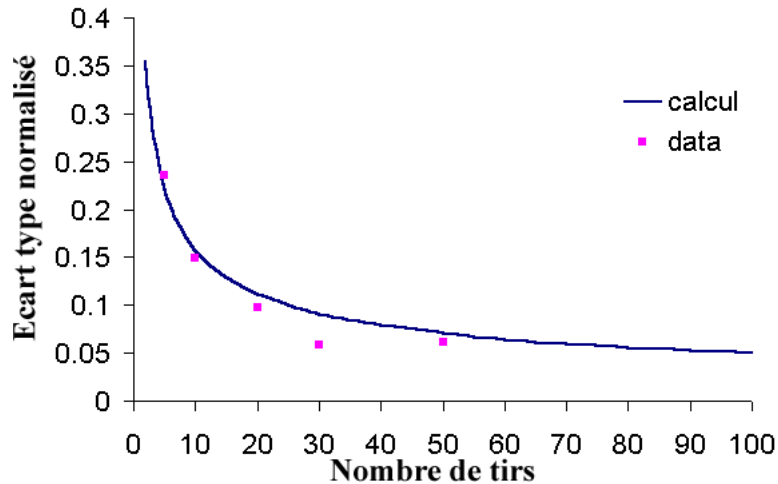


FIG. 2.20 – Variation de l'écart type sur la mesure de la probabilité d'endommagement, en fonction du nombre de zones N testées. Mesure effectuée dans le volume d'une silice.

Suite à ces mesures, pour faire un compromis entre précision et temps d'acquisition, nous avons choisi d'effectuer 30 tirs par énergie pour tester nos échantillons. L'écart type normalisé sur les mesures est alors de 9 %. Dans le cas où l'on cherche une précision accrue, on pourra utiliser 50, voire 100 tirs, si la place sur l'échantillon est suffisante.

Dans le cas général, les courbes de seuil seront tracées avec N=30, pour 30 énergies différentes, soit 900 points de mesure pour chaque échantillon.

### 2.6.2 Maillage spatial

Nous venons de voir que pour améliorer la statistique, un grand nombre de sites doit être testé. La place disponible sur l'échantillon devient alors une contrainte. Nous devons donc optimiser la distance entre les sites testés, qui est limitée par la zone modifiée après tir laser. Cette modification peut être visible :

pollution par des débris, brûlure du plasma,... ou invisible : contraintes, microfractures, modifications microscopiques...

Une étude a été menée dans le cas du volume de la silice. Ce matériau est celui pour lequel nous observons les dimensions d'endommagement les plus grandes dans nos conditions de test (une centaine de microns). Ces endommagements s'étendent donc sur une zone plus grande que la taille du faisceau (dizaine de microns).

Une énergie correspondant à une probabilité d'endommagement de 0.5 a été choisie. Cette probabilité correspondant à un nombre de tirs  $N$  de 50, et à une distance entre les tirs de 1mm, pour laquelle nous pouvons considérer que la zone testée n'est pas modifiée par la précédente. Le pas entre chaque tir a ensuite été diminué, jusqu'à  $100\mu m$ . Les résultats sont présentés dans la figure 2.21.

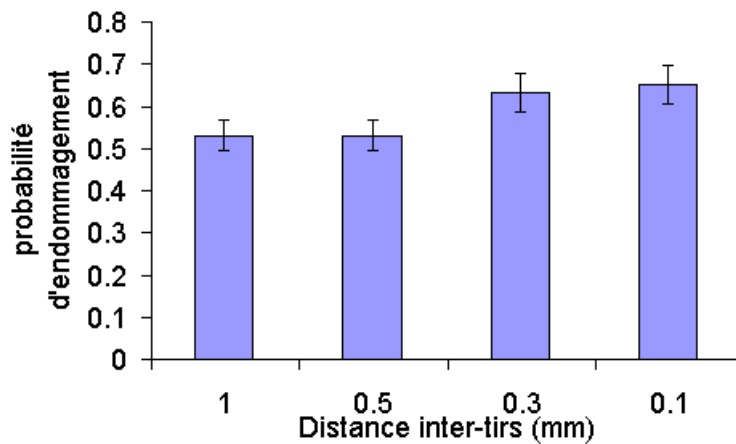


FIG. 2.21 – Probabilités d'endommagement à énergie fixe, en fonction de la distance entre les tirs

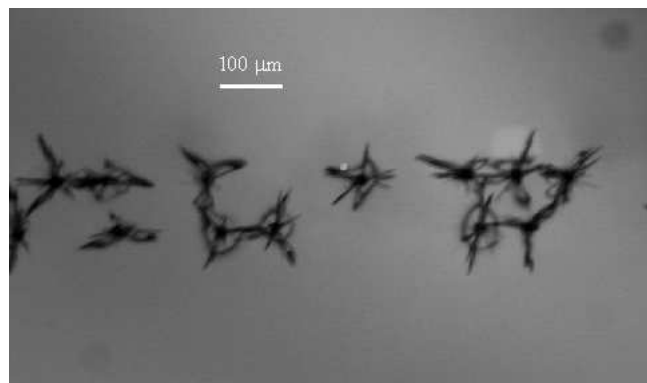


FIG. 2.22 – Echantillon après un test avec une distance inter-tirs de  $100\mu m$

La figure 2.22 représente une photographie de l'échantillon pour un test réalisé avec une distance de  $100\mu m$  entre les tirs. Cette distance correspondant à

la taille des endommagements, on comprend donc que la mesure du seuil soit affectée. Par contre d'après les résultats présentés précédemment, la mesure est également altérée pour une distance entre les tirs de  $300\mu m$ . Il semble donc dans ce cas, que le matériau ait été modifié de façon invisible autour de l'impact. Nous avons donc choisi pour nos tests ultérieurs, de fixer la distance à  $0.5mm$ . Il est bien évident que l'optimisation de la distance entre les sites doit être réitérée pour chaque nouveau matériau, ainsi que pour des études sur les surfaces.

Remarquons également que ces effets peuvent fausser la mesure lors de l'utilisation de la procédure de "Raster Scan" (voir partie 1.4) pour tester les échantillons. Cette procédure étant utilisée pour simuler un grand faisceau à partir d'un petit, les comparaisons entre tailles de faisceaux pourraient ne pas être valides.

### 2.6.3 Maillage temporel

Nous verrons dans le chapitre suivant, que des tests d'endommagement dans des liquides ont été effectués. Dans ce cas particulier l'endommagement est "réversible" et le laser est alors focalisé toujours au même endroit. Il est donc important d'attendre entre chaque tir que le liquide se relaxe, afin de mesurer une probabilité d'endommagement correcte. C'est pourquoi nous cherchons à quantifier ce temps de relaxation, pour pouvoir laisser un intervalle de temps supérieur entre chaque tir.

Une énergie correspondant à une probabilité de 0.8 a été choisie, afin de maximiser la perturbation. Ces mesures ont été effectuées dans le cas de l'eau, avec  $N=50$  tirs, pour différentes fréquences de répétitions des tirs. Les mesures sont présentées figure 2.23.

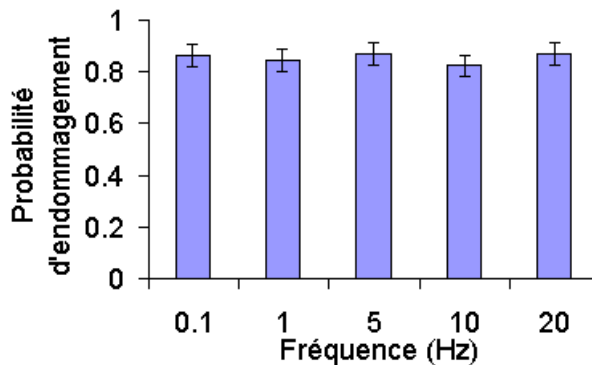


FIG. 2.23 – Probabilité d'endommagement à énergie fixe, en fonction de la fréquence de tir, dans de l'eau dé-ionisée

D'après ces résultats, le liquide se relaxe en moins de 50ms. Il sera donc possible de travailler à la fréquence maximale du laser (20Hz), de façon à effectuer des mesures rapides.

## 2.7 Procédures expérimentales

### 2.7.1 Description des tests utilisés

Les procédures de test qui ont été mises en place et utilisées sur le banc automatisé sont décrites ici. Les algorithmes de tests sont présentés figures 2.24 et 2.25.

#### 1-on-1

D'après ce que nous avons vu précédemment, une trentaine de sites sont testés pour 30 énergies différentes, soit 900 points de mesures pour tracer une courbe de seuil. Cette procédure est adaptée en testant moins de sites dans le cas où très peu de place est disponible sur l'échantillon. Dans le cas où l'on recherche seulement à mesurer le seuil bas avec une très grande précision, on peut ne tester que quelques énergies différentes, mais avec une centaine de sites par énergie.

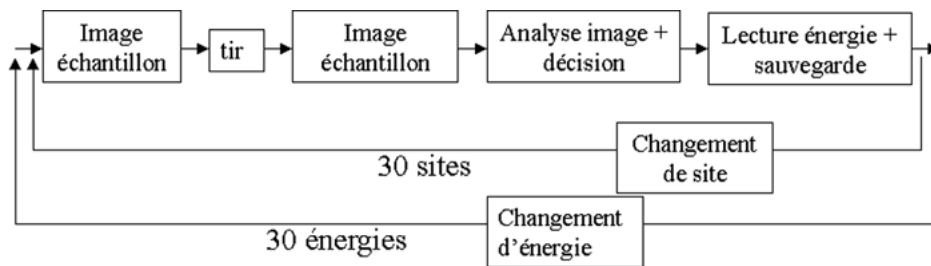


FIG. 2.24 – Procédure de test 1-on-1

#### S-on-1 et R-on-1

Lors de tests multicoups de tenue au flux en mode S-on-1, le nombre maximal de tirs cumulés sur un même site est fixé arbitrairement à 1000, pour des raisons de temps d'acquisition. Au delà de ce nombre de tirs le site est considéré comme ne s'endommageant pas à l'énergie utilisée. En R-on-1 chaque site testé aboutit à un claquage.

Dans les deux cas, si l'énergie est faible, et la fréquence de répétition de 1 Hz, la mesure peut durer plusieurs heures.

### 2.7.2 Précision des mesures

#### Erreur sur la mesure de probabilité

D'après 2.6.1, nous pouvons quantifier notre précision expérimentale suivant l'échantillonnage N de tirs par énergies. La précision relative sur la mesure de p

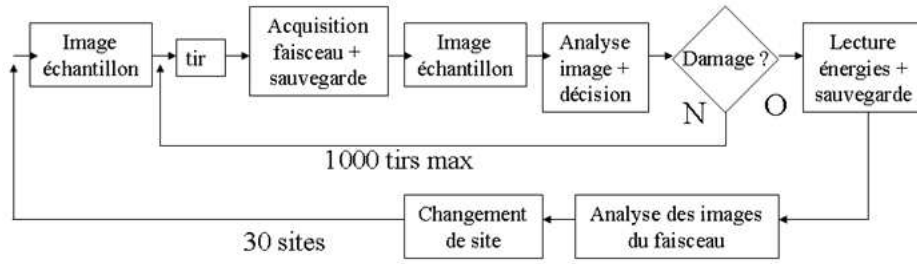


FIG. 2.25 – Procédure de test S-on-1, pour la procédure R-on-1 une rampe d'énergie est appliquée sur chaque site

est :

$$\frac{\Delta p}{p} = \sqrt{\frac{(1-p)}{pN}} \quad (2.9)$$

Pour  $N=30$  tirs et  $p=0.5$ , l'erreur est de  $\pm 9\%$ , elle passe à  $\pm 7\%$  pour  $N=50$  tirs et  $\pm 5\%$  pour  $N=100$  tirs.

### Erreur sur la mesure de la densité d'énergie

La densité d'énergie  $F$  est calculée à partir de l'énergie mesurée  $E$  sur le détecteur, et de la surface équivalente du faisceau :

$$F = \frac{E}{S_{eq}} \quad (2.10)$$

L'erreur relative sur la mesure de la densité d'énergie s'exprime alors de la façon suivante :

$$\frac{\Delta F}{F} = \frac{\Delta E}{E} + \frac{\Delta S_{eq}}{S_{eq}} \quad (2.11)$$

D'après les mesures de variations de surface équivalente et les mesures de stabilité en énergie présentées dans la section 2.5, nous pouvons quantifier cette erreur (tableau 2.8) comme suit :

Longueur d'onde	Erreur
1064nm	7.3%
532nm	8.5%
355nm	9.4%

TAB. 2.8 – Erreur relative sur la mesure de densité d'énergie



### 2.7.3 Valeur du champ électrique pour de petits faisceaux

L'interprétation des mécanismes d'endommagement requiert la connaissance du champ électrique maximum dans la zone éclairée. Dans le cas de faisceaux peu convergents, il est facile de relier la valeur du champ à celle de la fluence. Cependant, pour des faisceaux très convergents le calcul n'est pas immédiat, et nécessite d'être explicite.

L'échantillon reçoit une énergie totale donnée par le flux du vecteur de Poynting, qui peut s'écrire de la façon suivante [101] :

$$\Phi = \left( \frac{4\pi^2}{2\omega\mu} \right) \int_0^k \alpha(\sigma) A^2(\sigma) d\sigma \quad (2.12)$$

avec  $\mu$  la perméabilité,  $\alpha(\sigma) = \sqrt{k^2 - \sigma^2}$ ,  $k = \frac{2\pi n}{\lambda}$ ,  $\lambda$  la longueur d'onde incidente,  $\frac{\sigma}{2\pi}$  la fréquence spatiale à deux dimensions et  $A(\sigma)$  la transformée de Fourier du champ électrique  $E(r)$  dans le plan  $z=0$  :

$$A(\sigma) = T.F. \left( E_0 \exp \left[ - \left( \frac{r}{L} \right)^2 \right] \right) \quad (2.13)$$

Dans le cas d'un faisceau peu divergent, on a  $\alpha \approx k$  et donc, avec le théorème de Parseval :

$$\Phi = \frac{4\pi^2}{2\omega\mu} \alpha \int A^2 d\sigma = \frac{\alpha}{2\omega\mu} \int E^2 ds \quad (2.14)$$

Et par conséquent  $\frac{d\Phi}{d\Sigma} = \frac{\alpha}{2\omega\mu} E^2$  représente la densité d'énergie, conforme aux formules utilisées en 2.5.3.

Par contre, les faisceaux très convergents n'autorisent pas l'approximation  $\alpha \approx k$ , de sorte qu'il nous faut calculer le flux du vecteur de Poynting sans approximation. Dans le cas d'une incidence normale, nous obtenons :

$$A(\sigma) = \left( \frac{1}{4\pi^2} \right) (\pi L^2) E_0 \exp \left[ - \frac{(\sigma L)^2}{2} \right] \quad (2.15)$$

et ainsi :

$$\frac{\Phi}{S} = \left( \frac{E_0^2}{2\omega\mu} \right) \int_0^{\frac{kL}{\sqrt{2}}} \alpha(uL^{-1}\sqrt{2}) \exp(-u^2) u du = \left( \frac{E_0^2}{2\omega\mu} I(L) \right) \quad (2.16)$$

Le champ électrique peut alors être écrit :

$$E_0^2(L) = \frac{2\omega\mu\Phi/S}{I(L)} \quad (2.17)$$

Cette relation montre qu'à une fluence moyenne  $\Phi/S$  donnée, la valeur maximale du champ électrique dépend de la taille du spot. Cependant, comme le montre la figure 2.26, cette dépendance est négligeable dans nos conditions expérimentales.

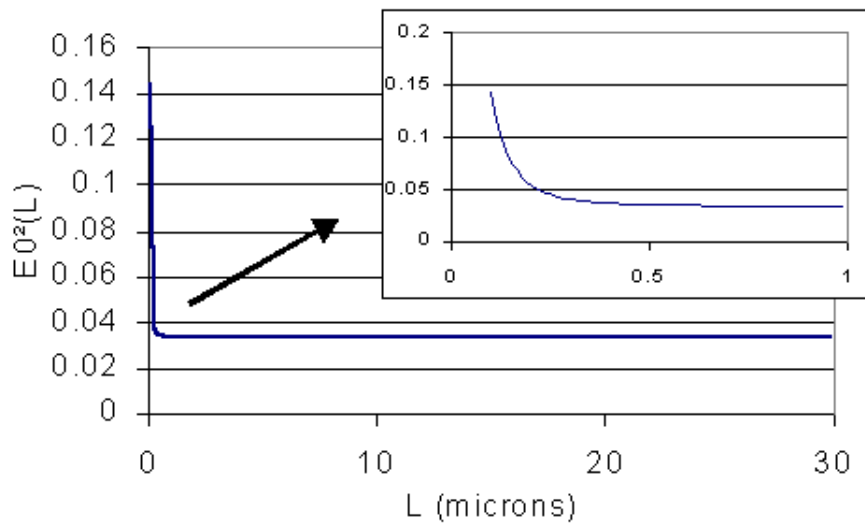


FIG. 2.26 – Variations du carré du champ électrique en fonction de la taille du spot  $L$ , pour une fluence constante, à  $\lambda = 1064nm$

## 2.8 Conclusion

Nous avons développé un dispositif de mesure de tenue au flux automatique combinant une détermination précise de l'endommagement par traitement d'image à un contrôle rigoureux des paramètres du faisceau laser pour chaque tir. Il a été démontré à travers différents exemples que l'ensemble du dispositif permettait :

- de détecter l'initiation de l'endommagement avec une grande précision, et de suivre l'évolution de la croissance des endommagements en temps réel, grâce à un dispositif de détection plus performant que les autres techniques existantes.
- de tracer des courbes de probabilités d'endommagement très précises dans différentes conditions de tests (1-on-1, S-on-1, R-on-1), aux trois harmoniques du YAG.
- de contrôler rigoureusement le faisceau pour chaque tir, ce qui permet de déterminer la densité d'énergie effective vue par l'échantillon.
- de corrélérer les morphologies d'endommagement mesurées à l'AFM à la densité d'énergie localisée.

Différents éléments restent cependant à améliorer comme la mesure du profil temporel qui n'est pas systématique ou l'élimination des artefacts de mesure (tir sur des poussières) par traitement d'image.



## Chapitre 3

# MODELISATION, ANALYSE ET INTERPRETATION DES COURBES DE SEUIL D'ENDOMMAGEMENT

Dans ce chapitre nous exploitons les résultats de la métrologie pour une investigation du phénomène de l'endommagement laser dans les verres. Grâce à une modélisation phénoménologique et stochastique des courbes de seuil, nous démontrons l'existence de sites précurseurs faiblement distribués, et responsables de l'initiation des dommages. Nous extrayons la densité des défauts et leur seuil de claquage pour différents échantillons, et montrons en conséquence les comportements différents des surfaces et volumes. De façon générale un très bon accord calcul/mesure est obtenu. Des mélanges de liquides viennent encore conforter ces conclusions.

Le cas d'optiques soumises à des tirs répétés est également analysé grâce à ce modèle. Nous montrons que la diminution du seuil d'endommagement peut être attribuée au même type de défauts que lors d'un tir unique. Les résultats obtenus nous permettent d'établir une estimation de la durée de vie des optiques lors d'irradiations répétées.

### 3.1 Introduction

Lorsque l'on mesure la probabilité d'endommagement en fonction de la densité d'énergie incidente, en mode 1-on-1, deux types de comportements sont observés, suivant la nature du matériau. Dans le cas d'un matériau absorbant comme une couche métallique par exemple, il existe une valeur limite d'énergie à partir de laquelle il se produit toujours un endommagement (figure 3.1). Les faibles dispersions de seuils observées dans ce cas peuvent être expliquées par des fluctuations du laser. Ce comportement s'explique facilement par la forte absorption du matériau intrinsèque à la longueur d'onde de test, induisant un mécanisme d'endommagement thermique si l'énergie est supérieure à celle nécessaire à la fusion du matériau. Les morphologies d'endommagement observées mettent clairement en évidence ces mécanismes thermiques (voir figure 3.1).

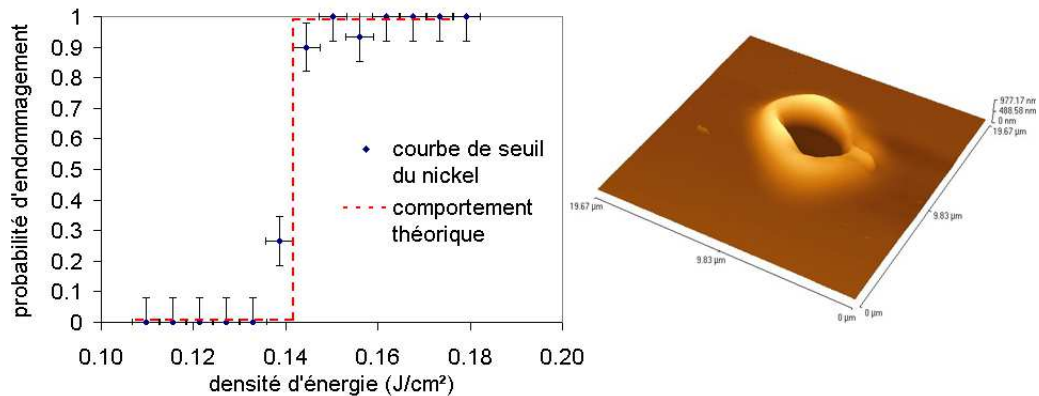


FIG. 3.1 – Courbe de seuil d'une couche de nickel d'épaisseur 200nm, et image AFM d'un endommagement.

Or dans le cas des matériaux diélectriques, nous observons dans nos conditions de mesures, une dispersion des valeurs de seuils obtenues lors de tests sur des zones exemptes de tout défaut visible au microscope (figure 3.2). Sur cette figure par exemple, la dispersion des valeurs mesurée est proche de 0.7, valeur bien supérieure à celle du métal (0.1). Cette dispersion ne peut en aucun cas être attribuée à une imperfection de la métrologie, compte tenu de la précision du banc de mesure.

Ce phénomène de dispersion a été remarqué par plusieurs équipes pour des matériaux massifs ou en couches minces, lors de l'utilisation de faisceaux très focalisés (quelques dizaines de microns)[29, 88, 28, 27]. Cette dispersion des seuils peut être interprétée en évoquant la présence de défauts initiateurs de l'endommagement laser, comme nous l'avons vu dans la partie 1.

Dans un premier temps, nous présenterons une modélisation de ces phénomènes, basée sur des travaux existant [88, 28, 27, 28, 29], mais adaptée à notre

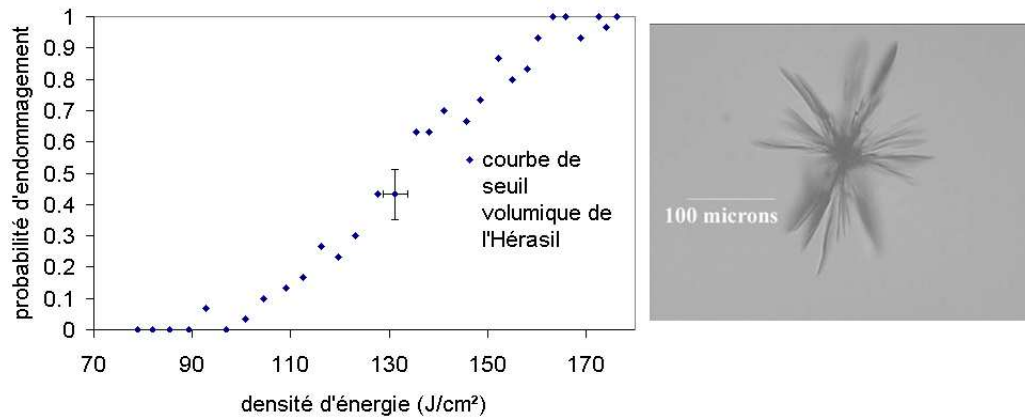


FIG. 3.2 – Courbe de seuil du volume d'un verre de silice Hérasil, et image d'un endommagement.

étude, notamment pour pouvoir traiter le cas des surfaces et des couches minces. Ce modèle sera validé par une étude sur des liquides contenant des densités de défauts calibrées.

Cette modélisation nous permettra dans un deuxième temps d'interpréter les courbes de seuil obtenues en surface et volume de différents types de verres, ainsi que sur des couches minces.

Pour mieux appréhender les mécanismes, nous présenterons ensuite une étude originale qui nous permettra d'étudier le claquage électrique de ces matériaux.

La dernière partie de ce chapitre sera consacrée à l'étude du comportement des verres lors de tirs répétés. Nous verrons notamment comment il est possible d'estimer la durée de vie des "nano-défauts". Ce résultat majeur permettra d'estimer avec précision la durée de vie des optiques sous flux.

## 3.2 Approche phénoménologique des nano-centres

### 3.2.1 Cas de défauts sur la surface

Considérons des nano-précurseurs de l'endommagement, répartis de façon homogène sur l'échantillon. La probabilité d'endommagement peut alors s'écrire comme la probabilité qu'un défaut soit irradié avec une densité d'énergie supérieure à son seuil de claquage intrinsèque, que nous appellerons "T" (figure 3.3). Nous supposons dans un premier temps que tous les défauts ont le même seuil de claquage, et qu'ils sont uniformément distribués.

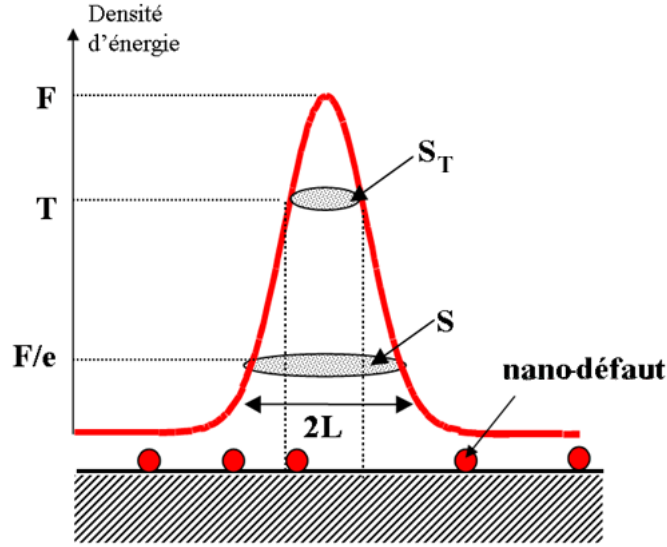


FIG. 3.3 – Présence sous le spot de nano-défauts ayant un seuil de claquage intrinsèque "T".  $S_T$  désigne la surface sous laquelle les défauts peuvent claquier.

### Présence d'une seule sorte de défaut

Nous supposons le faisceau Gaussien et l'incidence normale. La distribution d'intensité ( $I$ ) du faisceau est fonction de la distance radiale ( $r$ ) :

$$I(r) = F \exp \left[ -2 \left( \frac{r}{L} \right)^2 \right] \quad (3.1)$$

Où  $F$  est la densité d'énergie maximale et  $L$  le rayon à  $1/e$ .

L'expression analytique de la probabilité d'endommagement peut être obtenue de la façon suivante.

Considérons un élément de surface  $\delta S$  tel que le nombre moyen de défauts dans  $\delta S$  soit faible devant l'unité ( $d \cdot \delta S \ll 1$ )

Dans ces conditions, la probabilité de présence d'un défaut dans  $S$  s'approxime par [1] :

$$p(S) = d \cdot \delta S \quad (3.2)$$

On s'intéresse maintenant à la probabilité de présence d'un défaut dans une surface  $S$  contenant  $N$  élément  $\delta S$  :

$$S = N \cdot \delta S \quad (3.3)$$

Pour cela, il est commode de passer par la quantité  $q = 1 - p$ , qui représente la probabilité de n'avoir aucun défaut dans la zone  $\delta S$ . Ceci nous permet d'utiliser les probabilités conditionnelles, et d'écrire :

$$Q = q^N = (1 - p)^N \quad (3.4)$$

où  $Q$  est la probabilité d'avoir zéro défaut sur la surface  $S$ .  
On peut revenir alors à la grandeur recherchée :

$$P = 1 - Q = 1 - (1 - p)^N \quad (3.5)$$

où  $P$  désigne la probabilité d'avoir au moins un défaut dans la surface  $S$ .  
Développons l'expression de  $P$  :

$$P = 1 - [1 - d\delta S]^N \Rightarrow P = 1 - \left[1 - \frac{dS}{N}\right]^N \quad (3.6)$$

D'où, pour  $N$  grand :

$$\lim_{N \rightarrow +\infty} P = \lim_{N \rightarrow +\infty} \left[1 - \left(1 - \frac{dS}{N}\right)^N\right] \quad (3.7)$$

$$\Rightarrow P = 1 - \exp(-dS) \quad (3.8)$$

Si l'on considère que l'interaction entre les défauts peut être négligée dans nos conditions expérimentales[102], nous pouvons alors utiliser cet estimateur et l'appliquer au cas de défauts ayant un seuil de claquage  $T$  :

$$\begin{aligned} F < T &\Rightarrow P = 0 \\ F > T &\Rightarrow P = P(F) = 1 - \exp[-dS_T(F)] \end{aligned} \quad (3.9)$$

où  $d$  est la densité surfacique de défauts, et  $S_T$  est la partie du faisceau où la densité d'énergie  $F$  est supérieure au seuil de claquage des défauts  $T$  (figure 3.3).  
Déterminons maintenant cette surface  $S_T$ . Le rayon  $r_T$  de cette surface est obtenu à partir de l'équation 3.1 :

$$T = \exp\left[-2\left(\frac{r_T}{L}\right)^2\right] \quad (3.10)$$

Ce qui permet de calculer la surface  $S_T$  :

$$S_T = \frac{S}{2} \ln\left(\frac{F}{T}\right) \quad (3.11)$$

avec  $S = \pi L^2$  la taille du spot définie à  $1/e$ .

La loi de probabilité résultant des équations 3.9 et 3.11 peut s'écrire :

$$p(F) = 1 - \exp\left[-\frac{dS}{2} \ln\left(\frac{F}{T}\right)\right] \quad (3.12)$$

Dans cette équation, les paramètres propres au matériau sont le seuil de claquage et la densité des défauts.

La figure 3.4 illustre l'influence de la taille du spot sur l'allure de la courbe de



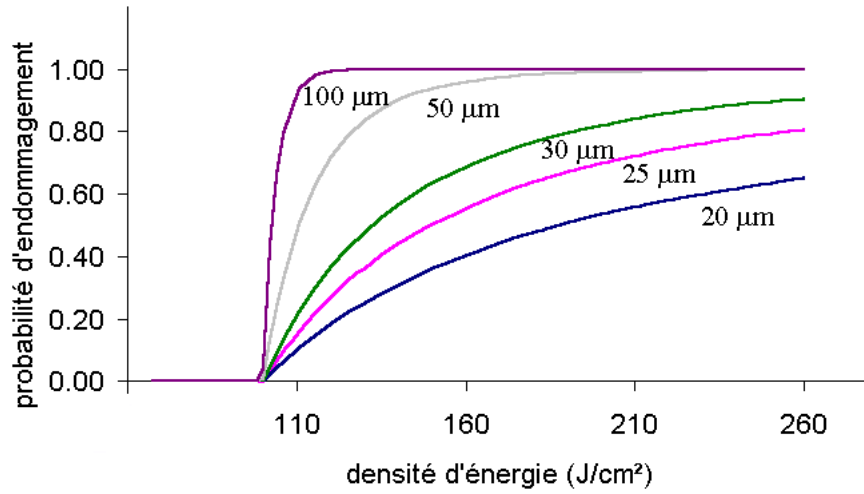


FIG. 3.4 – Influence de la taille du spot sur la courbe de seuil. Paramètres des courbes :  $d = 7.10^3/mm^2$  et  $T = 100J/cm^2$

seuil : lorsque la taille du spot ou la densité de défauts augmente, la courbe tend vers une fonction créneau.

Ce résultat a été démontré expérimentalement par Foltyn [27] dans le cas de couches minces.

On retiendra donc que les courbes de seuil peuvent être interprétées à l'aide d'une loi de probabilité qui dépend :

- de la densité des défauts
- de la surface éclairée
- du seuil de claquage des défauts

Ainsi, lorsque la taille du faisceau croît, la courbe de seuil tend vers une fonction créneau ; cela explique pourquoi certaines équipes disposant de laser puissants (grande surface d'éclairage) n'ont pas observé ces phénomènes.

### Présence de plusieurs sortes de défauts

Considérons maintenant le cas où plusieurs sortes de défauts ayant des densités  $d_i$  et des seuils  $T_i$ , sont distribués sur la surface de l'échantillon. S'il existe  $M$  classes de défauts avec des seuils tels que :  $T_1 < \dots < T_i < \dots < T_M$ , alors en l'absence d'interactions entre les défauts, nous obtenons :

$$T_i < F < T_{i+1} \Rightarrow P(F) = 1 - \exp \left[ - \sum_i d_i S_i \right] \quad (3.13)$$

avec  $S_i = S_{T_i}(F) = \frac{S}{2} \ln \left( \frac{F}{T_i} \right)$

Comme on peut le voir sur la figure 3.8, la présence de plusieurs sortes de défauts se traduit par des ruptures de pente sur les courbes de seuil.

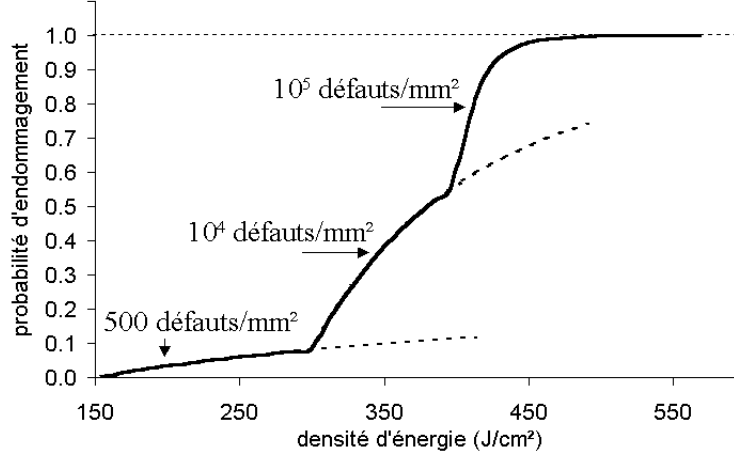


FIG. 3.5 – Courbe de seuil dans le cas de trois sortes de défauts ( $M=3$ ).  $T_1 = 150J/cm^2$ ,  $T_2 = 300J/cm^2$ ,  $T_3 = 400J/cm^2$ . La taille du spot est de  $25\mu m$

### 3.2.2 Cas de défauts dans le volume

#### Présence d'une seule sorte de défaut

Nous traitons maintenant le cas de défauts répartis de façon homogène dans le volume d'un matériau. Un calcul complet basé sur les mêmes hypothèses que dans le cas précédent aboutit à :

$$p(F) = 1 - \exp[-dV_T(F)] \quad (3.14)$$

Où  $d$  est la densité volumique de défauts,  $V_T$  est le volume dans lequel l'énergie du faisceau est supérieure au seuil des défauts (figure 3.6).

Le faisceau étant considéré comme gaussien, se propageant selon un axe  $z$ , son intensité peut s'écrire de la façon suivante :

$$I(r, z) = F \frac{w_0^2}{w^2(z)} \exp\left[-2 \frac{r^2}{w^2(z)}\right] \quad (3.15)$$

avec  $w^2(z) = w_0^2 \left[1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2\right]$  et  $z_R = \frac{\pi w_0^2 n}{\lambda}$ .

Dans chaque plan  $z$ , l'endommagement peut se produire si  $I(r, z) > T$  (figure 3.6), c'est-à-dire si :

$$r^2 \leq \frac{w^2(z)}{2} \ln\left(\frac{w_0^2}{w^2(z) \frac{T}{F}}\right) = r_{max}^2(z) \quad (3.16)$$

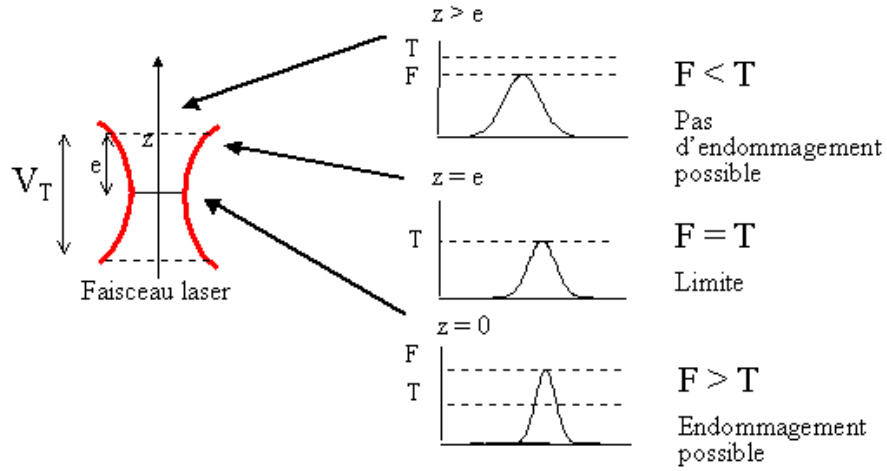


FIG. 3.6 – Cas d'un faisceau focalisé dans le volume

Le volume où peut s'initier un endommagement se situe alors entre les plans  $z=-e$  et  $z=+e$ , avec  $e$  tel que  $r_{max}(e) = 0$ . En intégrant sur tous ces plans, le volume dans lequel peut se produire un endommagement s'écrit :

$$\begin{aligned}
 V_T(F) &= \frac{\pi}{2} \int_{-e}^{+e} w^2(z) \ln \left( \frac{F}{T} \frac{w_0^2}{w^2(z)} \right) dz \\
 &= \frac{4}{3} \pi w_0^2 z_R \left( \frac{U^3}{6} + U - \arctan U \right) \quad (3.17)
 \end{aligned}$$

avec  $U = \sqrt{\frac{F}{T} - 1}$

Ce volume est représenté pour différentes valeurs de  $T$  sur la figure 3.7.

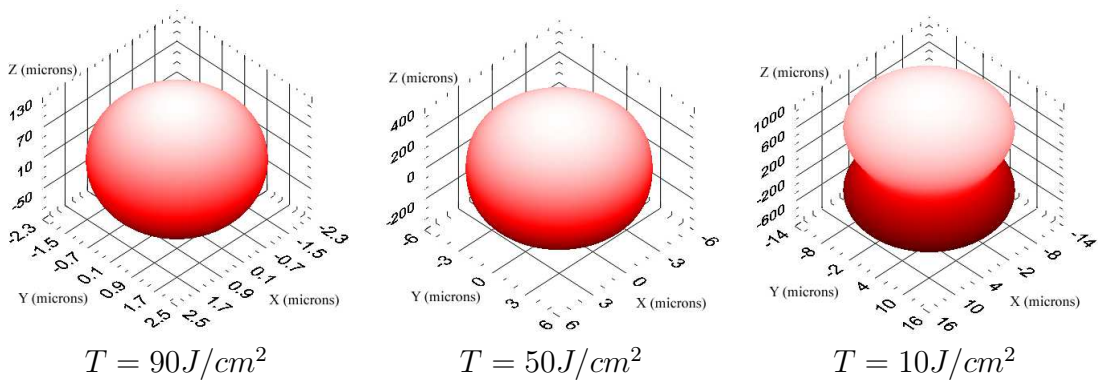


FIG. 3.7 – Volumes d'endommagement calculé pour différentes valeurs de  $T$ .  $F = 100 \text{ J/cm}^2$ ,  $\lambda = 1064 \text{ nm}$ ,  $w_0 = 10 \mu\text{m}$

### Présence de plusieurs sortes de défauts

Dans le cas de plusieurs sortes de défauts avec des densités  $d_i$  et des seuils  $T_i$ , nous pouvons écrire comme pour le cas de la surface :

$$T_i < F < T_{i+1} \Rightarrow p(F) = 1 - \exp \left[ - \sum_i d_i V_i \right] \quad (3.18)$$

avec  $V_i = V_{T_i}(F) = 0.5 \left[ u_i + \frac{u_i^3}{6} - \arctan(u_i) \right]$  et  $u_i = \sqrt{\frac{F}{T_i} - 1}$

La présence de plusieurs défauts se traduit, comme précédemment, par des ruptures de pente sur les courbes de seuil (figure 3.8).

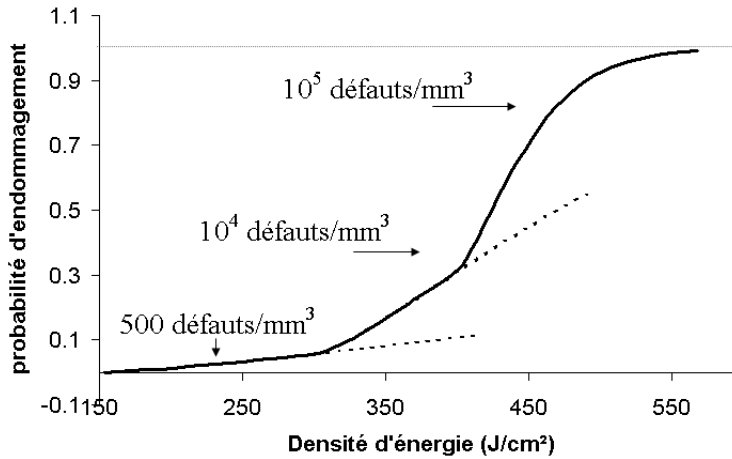


FIG. 3.8 – Courbe de seuil dans le cas de trois sortes de défauts ( $M=3$ ).  $T_1 = 150 J/cm^2$ ,  $T_2 = 300 J/cm^2$ ,  $T_3 = 400 J/cm^2$ . La taille du spot est de  $25 \mu m$

### Faisceau focalisé sur la surface

Lorsque le faisceau est focalisé sur la surface, le modèle volumique reste évidemment applicable. Dans ce cas, le volume dans lequel peut se produire l'endommagement est divisé par deux, du fait de l'absence de défauts dans l'air. Cependant cela suppose l'absence de couche de transition ou de contamination au voisinage de la surface. Nous reviendrons donc sur ce point en discutant des résultats expérimentaux.

### 3.2.3 Cas des couches minces

Le cas des couches minces peut être traité d'une façon similaire, en prenant en compte des défauts présents dans le volume de la couche. Le volume  $V_T$  donné

en 3.17 doit alors être re-calculé en intégrant dans les limites de la couche (figure 3.9) :

$$V_T(F) = \frac{\pi}{2} \int_0^{+e} w^2(z) \ln \left( \frac{F}{T} \frac{w_0^2}{w^2(z)} \right) \quad (3.19)$$

avec  $e$  l'épaisseur de la couche mince.

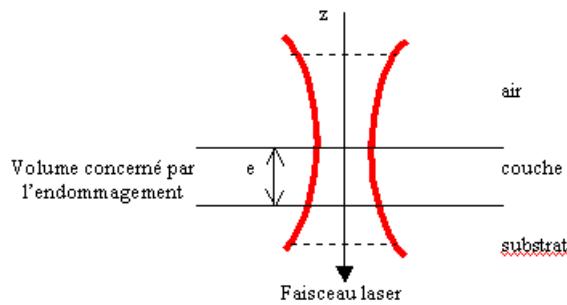


FIG. 3.9 – Cas d'une couche mince

Ce calcul peut être généralisé immédiatement aux multicouches, avec prise en compte de la nature des défauts dans chaque couche. Ceci nécessitera cependant la prise en compte des effets d'interférence dans les couches minces. Ces effets n'ont pas été pris en compte dans notre modèle monocouche, car par la suite il sera uniquement appliqué au cas de couches d'impuretés sur de la silice volumique ou de couches de silice déposées sur de la silice.

En figure 3.10, nous illustrons ces résultats dans le cas de couches de différentes épaisseurs, ayant des densités de défauts identiques.

Remarquons également que pour des épaisseurs micrométriques, la courbe de seuil s'identifie à une courbe de seuil surfacique (figure 3.11) : la condition requise pour cette égalité est  $d_S = ed_V$  (nombre de défauts identiques), avec  $d_S$  et  $d_V$  les densités surfacique et volumique, respectivement. Il est donc possible, sous ces conditions, d'utiliser l'un ou l'autre modèle.

### 3.3 Validation du modèle par l'étude de liquides

Nous avons présenté un modèle permettant de calculer la probabilité d'endommagement d'un matériau contenant des défauts initiateurs de l'endommagement. Pour valider ce modèle, il serait maintenant important de disposer d'un échantillon dans lequel on peut modifier à volonté les densités de défauts.

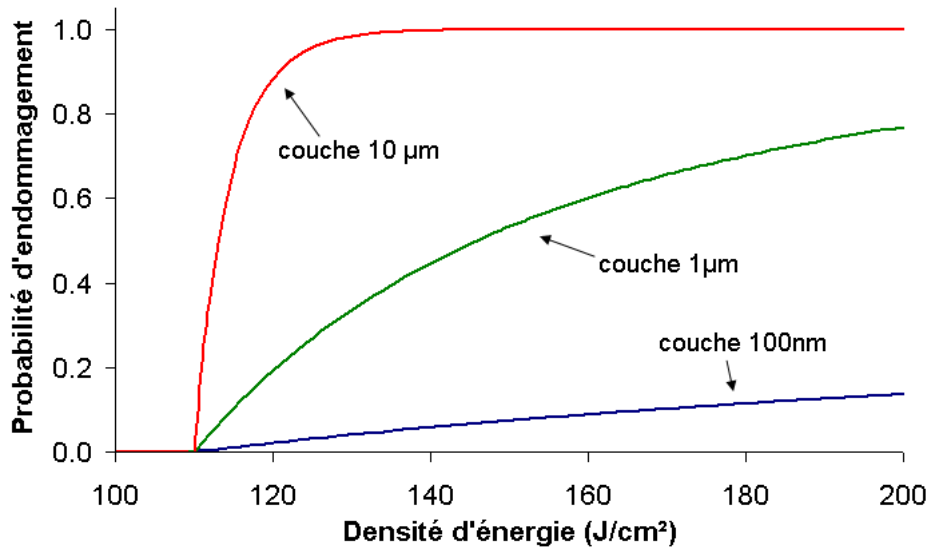


FIG. 3.10 – Courbes de seuil calculées en appliquant le modèle volumique à différentes épaisseurs de couches ayant des densités de défauts identiques ( $d = 10^{-2}$  défauts/ $\mu\text{m}^3$ ). Faisceau de  $10\mu\text{m}$ ,  $\lambda = 1064\text{nm}$

### 3.3.1 Approche expérimentale

#### Choix du matériau

Plusieurs techniques peuvent être utilisées pour introduire artificiellement des défauts dans une matrice. Il est possible par exemple d'implanter des défauts dans un matériau massif par implantation ionique, mais les densités de défauts obtenues sont trop importantes [103] pour pouvoir tracer des courbes de seuil avec les tailles de spot disponibles. Différentes expériences ont été menées pour introduire artificiellement des défauts dans de la silice [23, 22], mais les techniques de fabrication sont assez lourdes à mettre en œuvre et les densités difficiles à contrôler. Pour résoudre ce problème nous avons choisi d'utiliser des liquides, qui offrent la possibilité de pouvoir changer les densités de défauts, et mélanger différentes sortes de défauts. En effet l'"endommagement" des liquides est un phénomène connu et étudié, pour diverses applications telles que la spectroscopie par exemple [98, 104]. Le laser a pour effet d'exciter des particules en suspension dans le liquide provoquant un claquage caractérisé par l'apparition d'un plasma, d'une onde acoustique [105, 106].

Nous avons donc choisi d'utiliser de l'eau comme matrice pour les défauts. Nous disposons de deux types d'eaux, ayant des degrés de pureté différents : de l'eau "standard" (eau du robinet) et de l'eau dé-ionisée, provenant de la chaîne de nettoyage du laboratoire. Nous appellerons la première eau NP (Non Purifiée) et la deuxième eau DI (Dé-Ionisée).

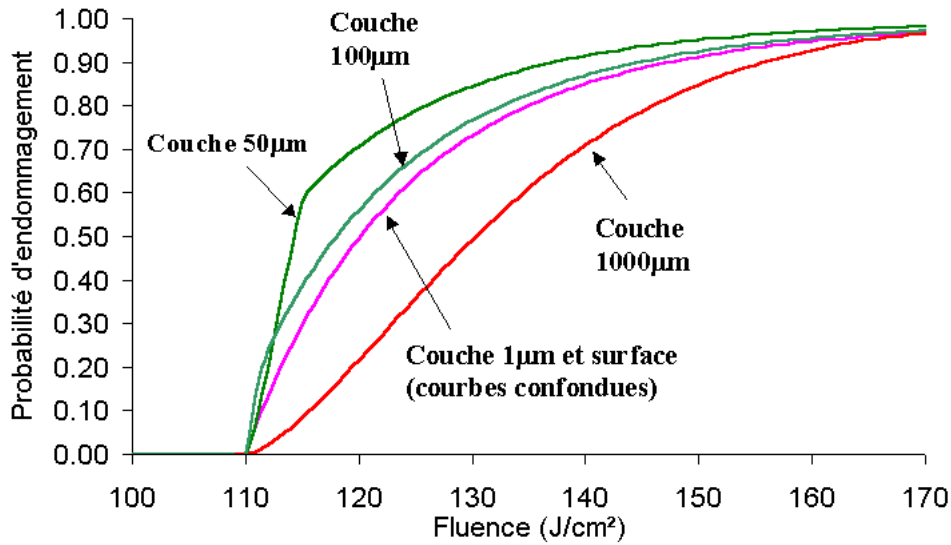


FIG. 3.11 – Courbes de seuil calculées en appliquant le modèle volumique à différentes épaisseurs de couches contenant toutes le même nombre de défauts ( $e = 1\mu m$ ,  $d = 0.2/\mu m^3$ ;  $e = 100\mu m$ ,  $d = 0.002/\mu m^3$ ; ...). La courbe surfacique est tracée pour comparaison avec  $d = 0.2/\mu m^2$ . Faisceau de  $10\mu m$ ,  $\lambda = 1064nm$

### Eau dé-ionisée

La procédure de test et de détection de claquage dans des liquides a été décrite dans la partie 2.

La courbe de seuil de l'eau DI, ainsi que l'ajustement des points expérimentaux par le modèle est représentée sur la figure 3.12.

La courbe de seuil mesurée révèle un changement de pente autour de  $170J/cm^2$ . Notons que pour obtenir une mesure précise de ce changement de pente, cette courbe a été mesurée sur 80 zones par énergie.

Pour expliquer ce résultat et utiliser le modèle volumique, il est nécessaire de considérer la présence de deux types de défauts initiateurs du claquage, ayant des seuils et des densités spécifiques. Comme on peut le voir sur la figure, un bon accord théorie/expérience est trouvé pour les densités et seuils de défauts suivants :

$$d_1 = 70 \text{ défauts}/mm^3 \quad ; \quad T = 25 J/cm^2 \quad (3.20)$$

$$d_2 = 4.10^4 \text{ défauts}/mm^3 \quad ; \quad T = 165J/cm^2 \quad (3.21)$$

L'unicité de cette solution sera confirmée par la suite, en analysant les différents mélanges de liquides.

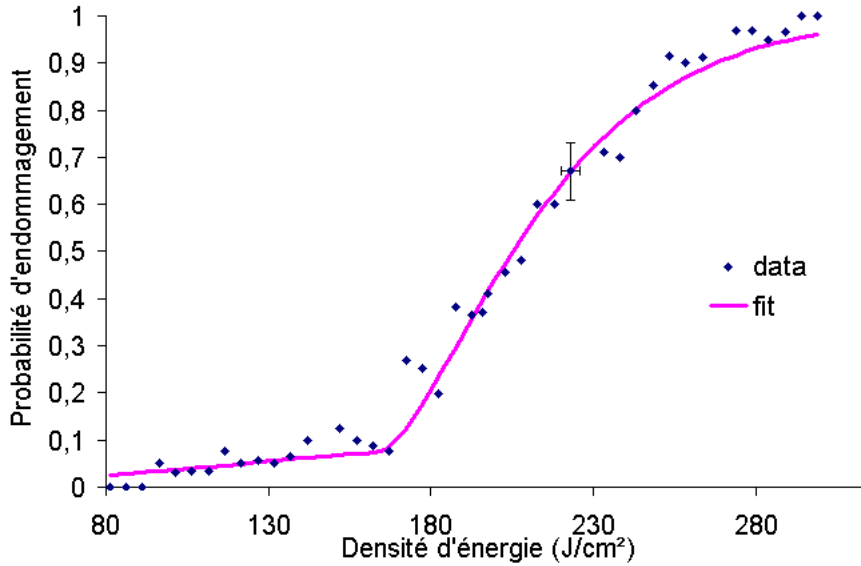


FIG. 3.12 – Courbe de seuil de l'eau dé-ionisée. Paramètres de test : 80 points par énergie,  $\lambda = 1064nm$ ,  $spot = 25\mu m$

### Eau non purifiée

La courbe de seuil de l'eau NP est représentée sur la figure 3.13.

Comme dans le cas précédent, le modèle volumique permet de révéler la présence de deux sortes de défauts, ayant les densités et les seuils suivant :

$$d'_1 = 2.10^3 \text{défauts}/mm^3 \quad ; \quad T = 24J/cm^2 \quad (3.22)$$

$$d'_2 = 4.10^4 \text{défauts}/mm^3 \quad ; \quad T = 153J/cm^2 \quad (3.23)$$

La deuxième sorte de défaut n'est pas aisée à discriminer sur les données expérimentales.

Les seuils très voisins des défauts de l'eau NP et de l'eau DI tendent à prouver que les courbes 3.12 et 3.13 caractérisent la présence des mêmes sortes de défauts, mais dans des proportions différentes. Grâce au modèle présenté précédemment, nous avons donc identifié deux liquides différents contenant les mêmes sortes de défauts, mais dans des proportions différentes.

### 3.3.2 Résultats obtenus

D'après ces premières mesures, en ajoutant de l'eau NP à de l'eau DI, il va être possible de modifier à volonté la concentration des défauts "1", et prévoir cette concentration facilement. Le tracé de courbes de seuils dans différents mélanges de ces deux liquides, va donc permettre de confronter les concentrations prévues à celles mesurées grâce à l'ajustement des courbes expérimentales par le



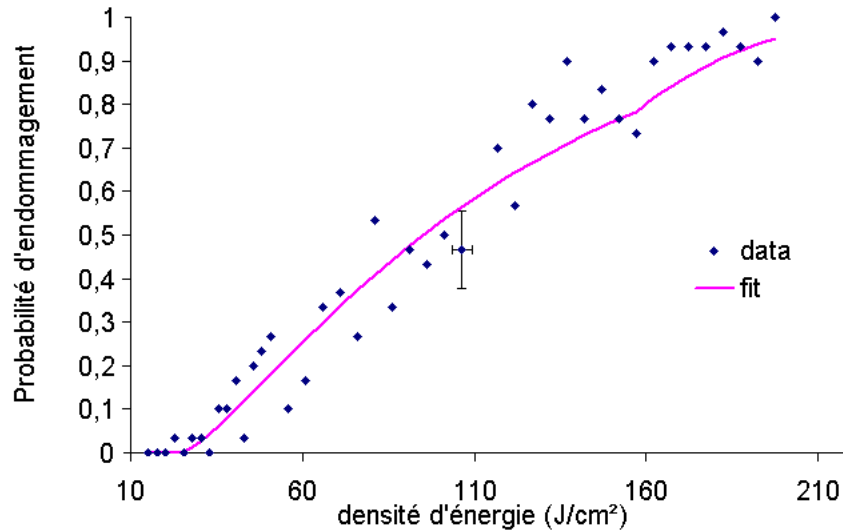


FIG. 3.13 – Courbe de seuil de l'eau non purifiée. Paramètres de test : 30 points par énergie,  $\lambda = 1064nm$ ,  $spot = 25\mu m$

modèle volumique.

### Procédure de test

Les liquides sont mélangés dans une cuve transparente en verre. Pour pouvoir doser les quantités respectives de chaque liquide dans cette cuve, nous utilisons une micropipette permettant d'effectuer un remplissage goutte à goutte. Les dosages des différents mélanges sont donc effectués en nombre de gouttes : 70 gouttes remplissent la cuve de 3mL qui est utilisée. Les différents mélanges utilisés sont présentés dans le tableau 3.1.

Mélange	1	2	3	4	5	6	7
Eau NP	0%	1,4%	7,1%	14,3%	28,6%	57,1%	100%
Eau DI	100%	98,6%	92,9%	85,7%	71,4%	42,9%	0%

TAB. 3.1 – Mélanges utilisés pour l'étude des courbes de seuil dans les liquides

### Mesures

Les courbes de seuil ont été tracées pour chaque mélange, elles sont présentées en annexe C.1. Dans un souci de clarté, nous présentons ici seulement les ajustements des points expérimentaux par le modèle (figure 3.14).

Les densités de défauts obtenues grâce au modèle permettent de comparer le nombre de défauts trouvé au nombre de défauts attendu, ce qui est fait sur la

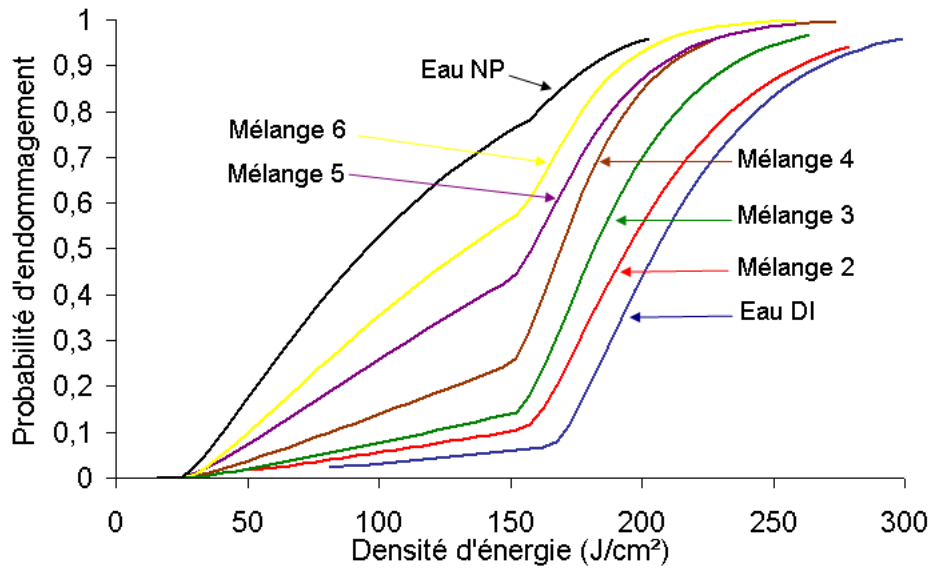


FIG. 3.14 – Ajustement des courbes de seuil mesurées des différents mélanges d'eau NP et d'eau DI

figure 3.15.

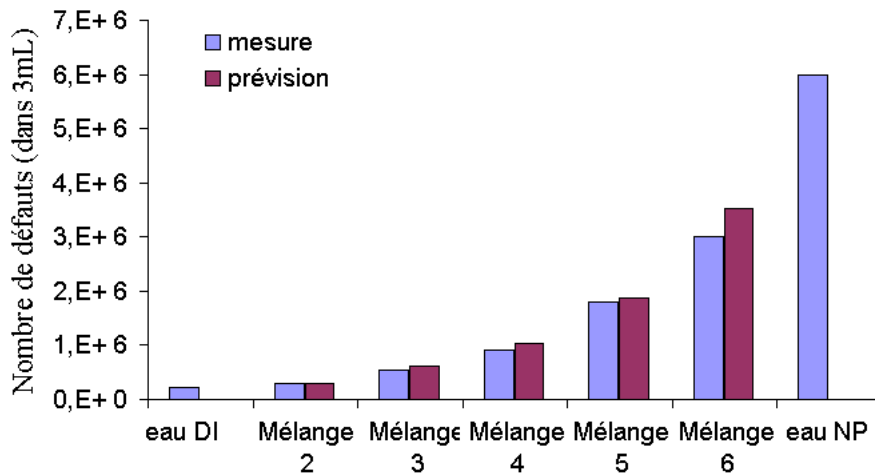


FIG. 3.15 – Nombre de défauts du type "1" dans les différents mélanges (ces mélanges ont des volumes égaux). On entend par nombre de défauts, le nombre de défauts dans le volume de l'éprouvette.

### Bilan

L'excellent accord obtenu entre théorie et expérience sur des mélanges de liquides, nous conforte quant à l'utilisation du modèle phénoménologique pour

l'analyse des sites précurseurs. Forts de ce résultat, nous étudions maintenant les substrats optiques.

### 3.4 Application aux substrats optiques

#### 3.4.1 Volumes

Le modèle va tout d'abord être appliqué au cas du volume de substrats optiques. Ce cas apparaît plus simple à traiter étant donné le nombre limité de paramètres pouvant intervenir dans le processus d'endommagement. En effet, le cas du volume de matériau permet d'éliminer les problèmes de polissage, de nettoyage, les rayures, les poussières. . .

#### Etude de différents substrats optiques

Nous avons tout d'abord testé à  $1,06\mu m$  plusieurs matériaux couramment utilisés : quartz fondu (Hérasil), silice synthétique (Suprasil), BK7, B2359, C20, Zérodur. Les mesures des seuils d'endommagement de ces différents matériaux sont représentées figure 3.16.

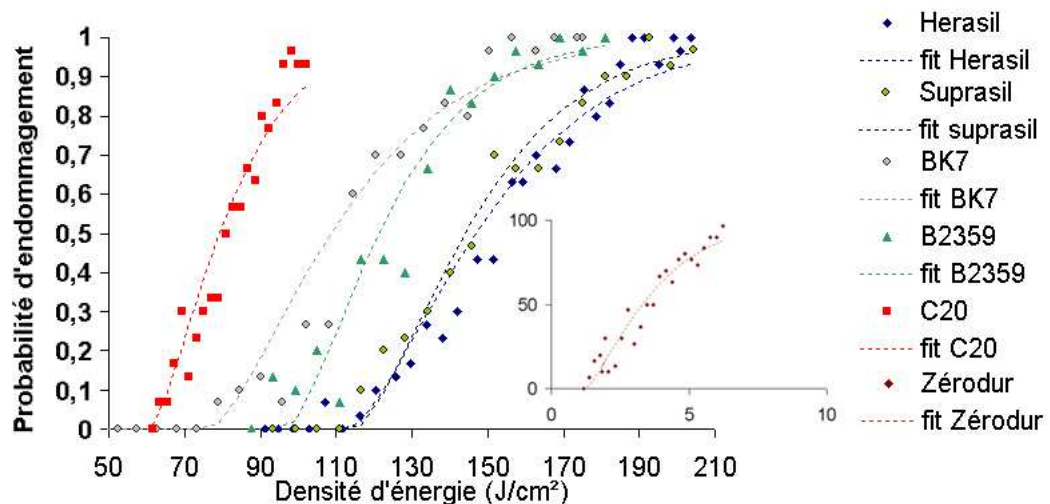


FIG. 3.16 – Comparaison des courbes de seuil de différents verres testés à  $1064nm$ . Les courbes en pointillés correspondent à l'ajustement des données au modèle volumique.

L'intérêt de ces mesures est de pouvoir constituer une base de données des tenues au flux des substrats optiques, testés dans des conditions identiques, afin de pouvoir les comparer. Notons que ces données sont très difficiles à trouver dans la littérature, et sont pourtant essentielles pour la communauté. Nous résumons donc dans le tableau 3.2 les seuils bas des différents substrats et cristaux testés, ainsi que les densités de défauts estimées par le modèle.

Matériau	Suprasil	Herasil	BK7	B2359	C20	Zérodur	B16
Seuil bas ( $J/cm^2$ )	115	113	66	96	60	2	108
Nombre de défauts dans $100\mu m^3$	43	38	31	38	62	3	30
Précision	11%	14%	17%	19%	13%	15%	14%

TAB. 3.2 – Tableau récapitulatif des seuils bas d'endommagement mesurés à 1064nm, et des densités de défauts estimées.

Nous constatons que les substrats de type Herasil, Suprasil, et B16 ont les tenues au flux supérieures à la centaine de Joules/ $cm^2$ , soit, en terme de champ électrique,  $1,4 \cdot 10^8 V/m$  (voir équation 2.14), ce qui les rend intéressants pour les applications haute tenue au flux. Cependant leur comportement lors de tirs répétés doit également être pris en compte dans le choix de ces matériaux. Le BK7 et le C20 donnent des valeurs inférieures ( $60 J/cm^2$ ), tandis que le Zérodur affiche la plus basse tenue au flux ( $2 J/cm^2$ ).

Les densités extraites pour les défauts sont de l'ordre de quelques dizaines de défauts dans un cube de  $100\mu m^3$ , ce qui est très faible. Ceci explique l'extrême difficulté à localiser ces défauts par des techniques non-optiques comme le MEB/TEM... Par ailleurs, ces densités sont du même ordre de grandeur dans les différents matériaux testés (excepté le Zérodur), ce qui semble étonnant pour des matériaux pourtant fabriqués différemment.

Nous pouvons également noter des différences de taille entre les endommagements des différents verres (figure 3.17). Ceci peut s'expliquer par les différences de coefficient de dilatation thermique ( $2 - 5 \cdot 10^{-8} K^{-1}$  dans le cas du Zérodur, contre  $5 - 6 \cdot 10^{-7} K^{-1}$  pour la silice) qui rendent le matériau plus ou moins sensible aux contraintes induites. Ces observations illustrent les aspects thermo-mécaniques impliqués dans le processus d'endommagement.

### Comparaison à différentes longueurs d'ondes

Nous savons que très peu d'études comparatives multi-longueur d'ondes ont été effectuées (2.2), tout au moins dans des conditions de test identiques. Il apparaît donc intéressant d'effectuer ces comparaisons, maintenant que nous disposons

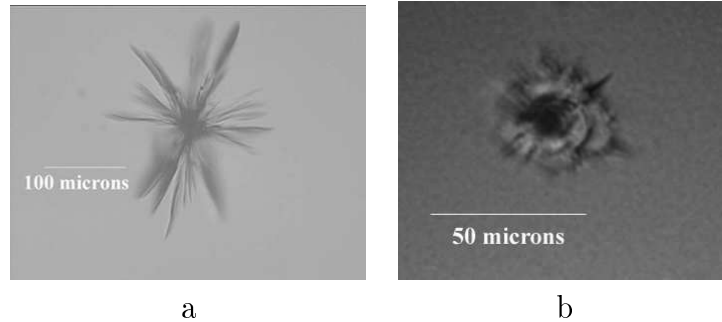


FIG. 3.17 – a : endommagement dans le volume d'un verre de silice Hérasil (impulsion de 7ns à 1064nm, taille du spot : 25microns) ; b : endommagement dans le volume d'un verre de type Zérodur (impulsion de 7ns à 1064nm, taille du spot : 25microns)

d'un outil de mesure performant et précis.

Sur la figure 3.18, nous comparons la tenue au flux d'un verre de silice Suprasil à 1064nm et 355nm.

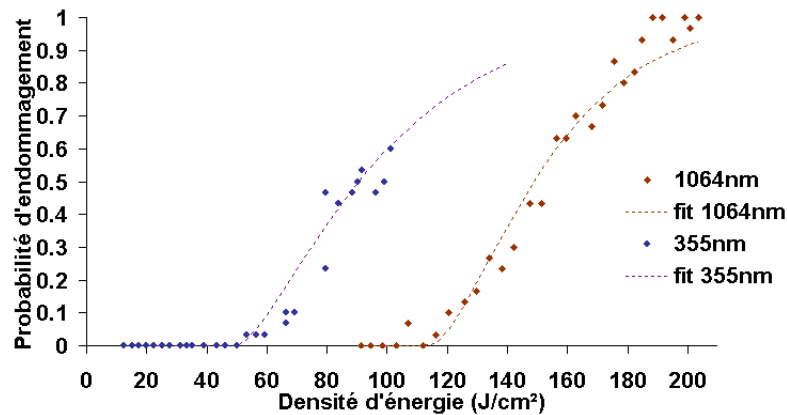


FIG. 3.18 – Courbes de probabilités d'endommagement d'un verre de Suprasil à 1064nm et 355nm

Remarquons tout d'abord que le seuil bas d'endommagement est divisé d'un facteur 2,5 à 355nm ( $48J/cm^2$ ) par rapport au seuil à 1064nm ( $116J/cm^2$ ).

Quant aux densités de défauts estimées grâce au modèle, elle sont similaires : environ  $40/100\mu m^3$  dans l'infrarouge et  $55/100\mu m^3$  dans l'ultraviolet. Compte tenu de l'imprécision sur cette mesure, nous pouvons donc considérer que les densités de sites initiateurs sont les mêmes. Ces sites pourraient alors être les mêmes à ces deux longueurs d'onde et seule leur absorption changerait puisque la valeur du seuil est différente. Ceci, associé à la similitude des morphologies d'endommagement observées (figure 3.19), suggère des mécanismes d'endommagement similaires.

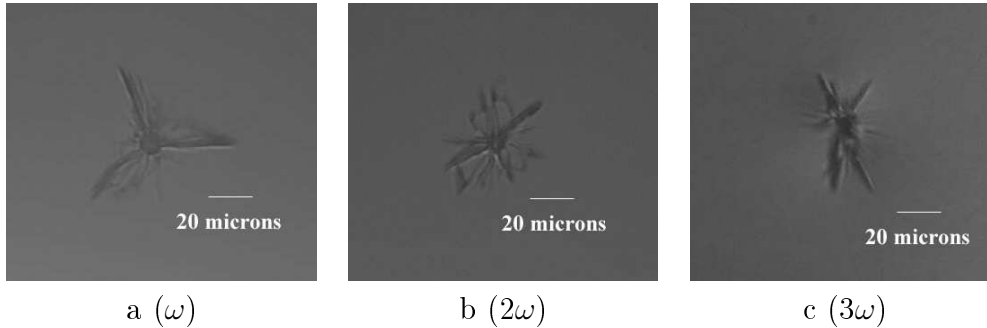


FIG. 3.19 – Endommagements dans le volume d’un verre de silice, à différentes longueurs d’ondes; a :  $\lambda = 1064nm$ ,  $\Phi = 12\mu m$ ; b :  $\lambda = 532nm$ ,  $\Phi = 6\mu m$ ; c :  $\lambda = 355nm$ ,  $\Phi = 6\mu m$

Cette décroissance du seuil d’endommagement avec la longueur d’onde est en accord avec les théories d’absorption multiphotonique qui sont supposées être le mécanisme d’endommagement dominant pour les longueurs d’ondes inférieures au micron [18, 14].

### 3.4.2 Surfaces des substrats

Le cas des surfaces est plus complexe à analyser, du fait de la présence possible de contaminants provenant du polissage, du nettoyage... Mais c’est également le cas le plus intéressant à traiter puisque c’est la surface des verres qui limite la tenue au flux et non pas le volume, comme nous allons le voir.

#### Tenue au flux des surfaces

Les différents verres testés au laboratoire présentent tous une nette différence de tenue au flux entre la surface et le volume. Il semble donc que la nature des défauts initiateurs à la surface soit différente de celle des défauts de volume. La tenue au flux étant liée à l’état de surface et aux traitements subis par cette surface, il est difficile de donner une valeur globale du rapport seuil surface/seuil volume. Sur les différents verres qui ont été mesurés, nous avons pu relever un facteur 2 à 3 entre le seuil de la surface et du volume (figure 3.20).

Ainsi la silice volumique supporte  $100J/cm^2$ , alors que sa tenue en surface est de l’ordre de  $40J/cm^2$ , ce qui démontre qu’il existe des sites initiateurs particuliers aux surfaces.

Nous constatons peu de différences entre les tenues au flux des faces avant et arrière, contrairement à ce qui a été observé dans d’autres travaux [107, 10]. En effet, l’utilisation de faisceaux très focalisés dans notre cas permet de diminuer

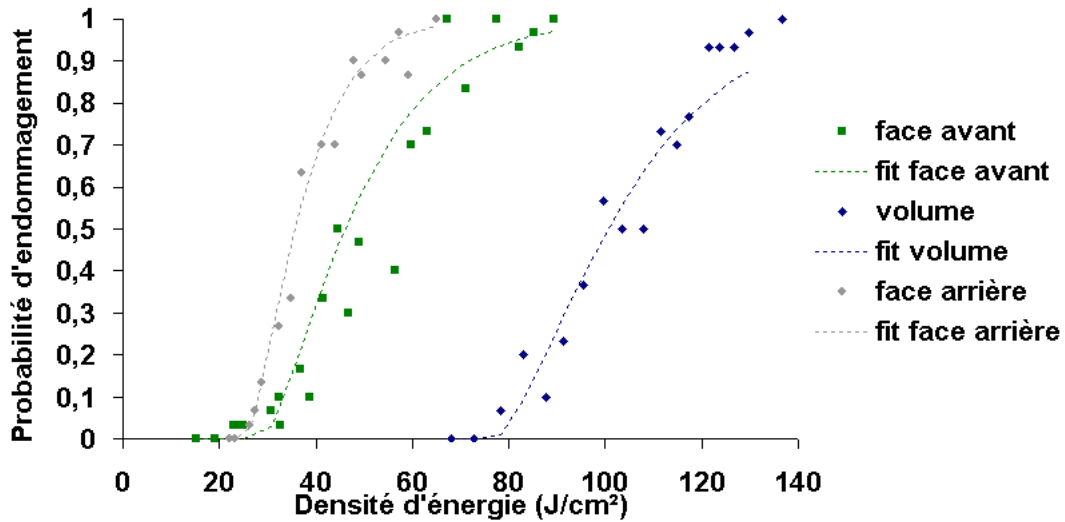


FIG. 3.20 – Comparaison des courbes de seuil des différentes faces et du volume d'un verre de BK7, testé à 1064nm

fortement les effets d'autofocalisation qui peuvent être à l'origine de différences face avant/arrière lors de l'utilisation d'un faisceau large [10].

### Densités de défauts en surface, corrélation aux procédés de polissage

Nous avons vu dans la partie 1.3 que le polissage des verres entraînait la présence d'une couche de contamination par des résidus, ou la présence de microcraquelures sous la surface. Ces défauts peuvent être des sites initiateurs de l'endommagement. L'utilisation du modèle pourrait donc nous permettre en analysant les courbes de seuil, d'estimer les densités de ces défauts. Cependant l'épaisseur de la couche de contamination doit être connue pour pouvoir utiliser le modèle adapté aux couches minces. Cette épaisseur étant très difficile à estimer, nous avons choisi d'utiliser une épaisseur de  $1\mu\text{m}$  ou de  $10\mu\text{m}$  pour pouvoir donner un ordre de grandeur. Des densités de l'ordre de  $10^{10}$  et  $10^9$  défauts par  $\text{mm}^3$  sont alors trouvées pour ces deux épaisseurs, ce qui correspond à 5 ou 6 décades de plus que la densité de défauts de volume. Nous reviendrons sur cette estimation, à la suite de l'étude morphologique des endommagements, au chapitre 4.

Il semble difficile d'éliminer complètement ces défauts lors des procédés de polissage. Par contre, l'amélioration de la tenue au flux peut passer par le changement des produits de polissage utilisés, de façon à ce que les défauts résiduels aient un seuil d'endommagement plus élevé.

L'analyse des courbes de seuil de verres ayant subi des polissages différents nous a permis de révéler différentes sortes de défauts ayant des comportements différents

(figure 3.21).

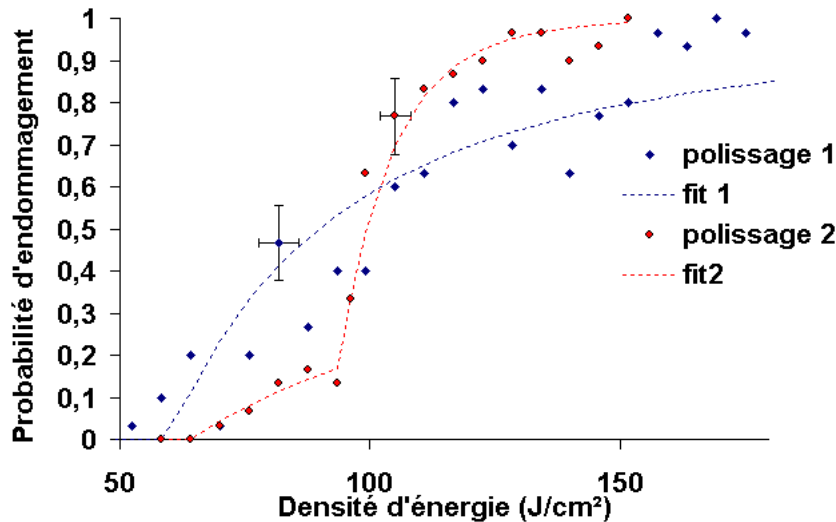


FIG. 3.21 – Courbes de seuil mesurées à 1064nm sur la face avant de deux silices polies avec des procédés différents

En effet, la courbe de seuil du verre référencé "polissage 1" laisse apparaître une sorte de défauts claquant vers  $50J/cm^2$ , alors que sur la courbe du verre référencé "polissage 2", la rupture de pente observée est caractéristique de deux types de défauts : un premier claquant aux alentours  $60J/cm^2$ , et un deuxième claquant vers  $90J/cm^2$ . Soulignons que le verre "polissage 2" est un verre ayant subi un polissage en vue d'améliorer la tenue au flux. Nous voyons ici clairement que ce type de polissage est performant puisqu'il a permis de gagner environ  $10J/cm^2$  sur le seuil bas. L'analyse des courbes de seuil nous a permis d'identifier la présence de deux types de défauts sur ce verre, dont un est vraiment limitant pour la tenue au flux. Pour aller plus loin il faudrait donc améliorer ce procédé de façon à réduire ou à éliminer le défaut claquant à  $60J/cm^2$ , ce qui permettrait d'obtenir un seuil de  $90J/cm^2$ .

L'analyse des courbes de seuil mesurées sur la surface et leur corrélation au polissage apparaît donc vraiment comme une technique intéressante pour l'amélioration des procédés, et l'obtention de meilleures tenues au flux.

### 3.4.3 Base de donnée des tenues aux flux des différents substrats

Comme nous l'avons dit précédemment, il est difficile de trouver dans la littérature des bases de données de la tenue au flux des différents matériaux, surtout si l'on souhaite également connaître les conditions précises des tests. Il semble



donc important de faire ici un bilan de toutes les données acquises au cours de cette thèse. L'ensemble de ces données est donc consigné dans le tableau 3.3, les conditions de test étant celles décrites dans la partie 2.

Matériau	Références / Fabricant	Longueur d'onde	Seuil bas d'endommagement	Remarques
Quartz fondu	Hérasil (Heraeus)	1064nm	$46J/cm^2$	face avant
			$113J/cm^2$	volume
		355nm	$13J/cm^2$	face avant
Silice synthétique	Suprasil (Heraeus)	1064nm	$115J/cm^2$	volume
		355nm	$48J/cm^2$	volume
BK7	melles griot	1064nm	$29J/cm^2$	face avant
			$66J/cm^2$	volume
			$27J/cm^2$	face arrière
			$96J/cm^2$	volume
	C20	1064nm	$60J/cm^2$	volume
	B16	1064nm	$108J/cm^2$	volume
Zerodur	Schott	1064nm	$2J/cm^2$	volume
KBr	inconnu	1064nm	$8J/cm^2$	volume

TAB. 3.3 – Tableau récapitulatif des mesures de tenue au flux des différents matériaux testés.

### 3.4.4 Cas d'une couche mince

Le cas que nous traitons ici est celui d'une couche mince de silice déposée par EBD (Electron Beam deposition) au laboratoire. Une courbe de seuil mesurée sur cet échantillon est représentée figure 3.22. Notons que pour cette courbe, nous ne disposons malheureusement pas des erreurs de mesure, car ces données ont été recueillies avant le travail de métrologie effectué le banc d'endommagement. Néanmoins, nous pouvons effectuer une estimation de la densité des défauts en effectuant un ajustement "haut" et un ajustement "bas", comme cela est fait sur la figure 3.22.

La densité de défauts estimée par ces ajustements est alors comprise entre  $3.10^{-3}$  et  $8.10^{-3}$  défauts par  $\mu m^2$  (soit 30 à 80 défauts dans un carré de  $100\mu m$  de côté).

Des analyses AFM ont été effectuées sur ces couches, ce qui nous a permis d'estimer les densités de défauts initiateurs de l'endommagement entre  $1.10^{-2}$  et  $1.10^{-3}$  défauts par  $\mu m^2$ . Ce résultat est majeur puisqu'il met en accord l'observation morphologique des endommagements aux densités de défaut déduites des courbes de seuil expérimentales. Nous invitons vivement le lecteur à se reporter

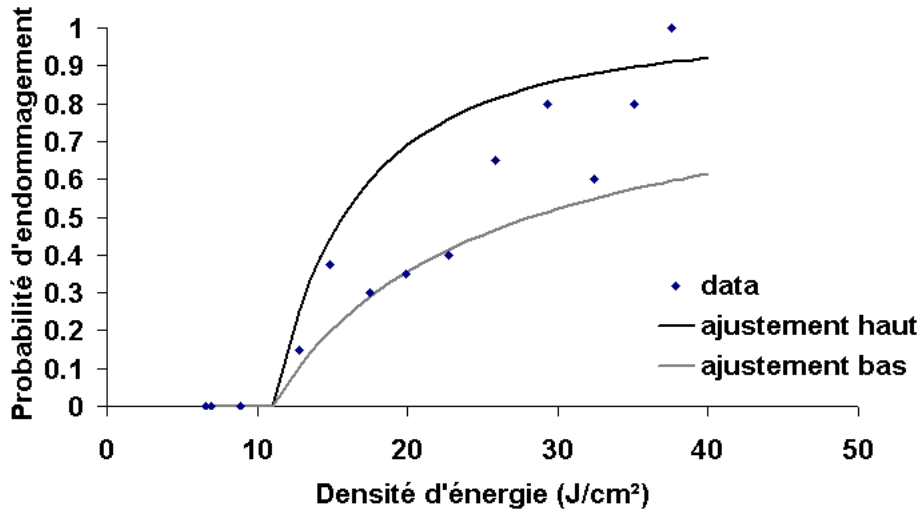


FIG. 3.22 – Courbe de seuil d'une couche de silice EBD.  $\lambda = 1064nm$ ,  $\Phi = 25\mu m$

à la partie 4.2.3, concernant l'étude morphologique des endommagements pour plus de détails.

## 3.5 Tenue au flux lors de tirs répétés

Nous avons montré dans les parties précédentes que l'endommagement laser dans les verres s'initiait sur des défauts présents dans la matière. Le but de cette partie est maintenant d'étudier le comportement de ces matériaux lors de tirs répétés. En effet, d'après l'étude bibliographique présentée dans la partie 1.6, le seuil d'endommagement dans les verres est lié au nombre de tirs vus par l'échantillon.

### 3.5.1 Mise en évidence expérimentale

Les mesures que nous présentons ont été effectuées dans le volume de verres de silice (Suprasil) et de BK7 à 1064nm.

#### Procédure de test

Pour quantifier l'effet de tirs répétés, deux procédures de tests peuvent être utilisées : une mesure R-on-1 ou une mesure S-on-1 (définies partie 1.4.3). La procédure R-on-1 ne nous paraît pas très bien adaptée à ce type d'étude puisque l'on mélange deux effets lors de la mesure : l'effet du nombre de tirs et l'effet de la rampe d'énergie appliquée. Nous utiliserons donc uniquement la procédure S-on-1 pour nous intéresser exclusivement à l'effet du nombre de tirs sur le seuil d'endommagement.

La probabilité d'endommagement au bout de  $M$  tirs est mesurée de la façon suivante : 0 si le verre n'a pas cassé au bout de  $M$  tirs, 1 si le verre a cassé pour un nombre de tirs  $\leq M$  ( $M=1$  correspond à la mesure 1-on-1).

Pour ces mesures, la fréquence de tir du laser a été fixée à 10Hz. Quelques mesures ont été effectuées à 1 Hz, qui n'ont pas révélé d'influence significative de la fréquence sur les résultats.

### Fragilisation du matériau

Les mesures pour les deux matériaux sont données figure 3.23 (BK7) et 3.24 (Suprasil), pour  $M$  variant de 1 à 1000 :  $P_1$  correspond à la probabilité d'endommagement après 1 tir,  $P_{10}$  la probabilité d'endommagement après 10 tirs,  $P_{100} \dots$

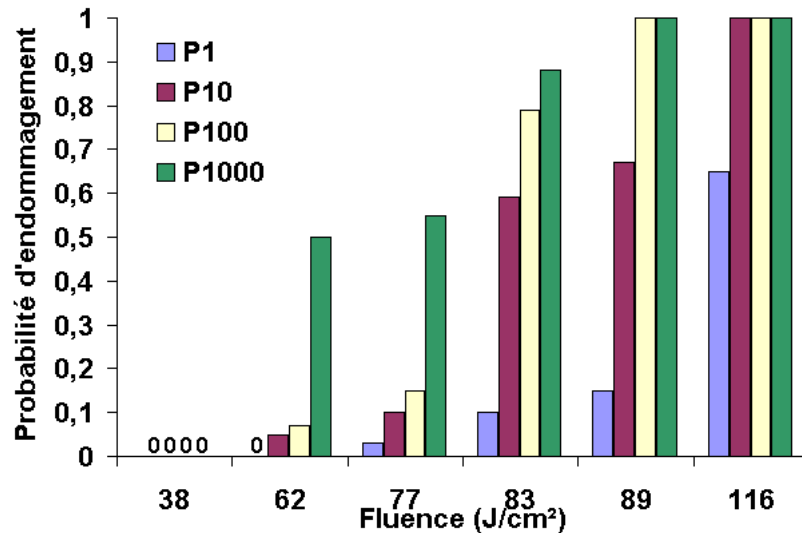


FIG. 3.23 – probabilités d'endommagement après 1, 10, 100, 1000 tirs ( $P_1$ ,  $P_{10}$ ,  $P_{100}$ ,  $P_{1000}$  respectivement) mesurées dans le volume d'un verre de BK7 à 1064nm

Cette diminution du seuil avec le nombre de tirs dans les verres est un phénomène connu, comme nous l'avons vu dans la partie 1.6, cependant ce phénomène reste inexplicé [58]. L'intérêt des mesures que nous venons de présenter est de mettre en évidence la nature statistique du phénomène. En effet, les valeurs observées dans la littérature associent généralement un seuil d'endommagement à un nombre de tirs cumulés (voir revue bibliographique de Chmel [58]). Or il est intéressant de noter que dans notre cas, l'utilisation d'un petit faisceau permet de mettre en évidence la différence de comportement des différentes zones testées sur l'échantillon. Cette inhomogénéité du matériau pourrait s'expliquer comme précédemment par la présence de défauts dans la matière, initiant un endommagement au bout d'un nombre de tirs dépendant de l'énergie appliquée.

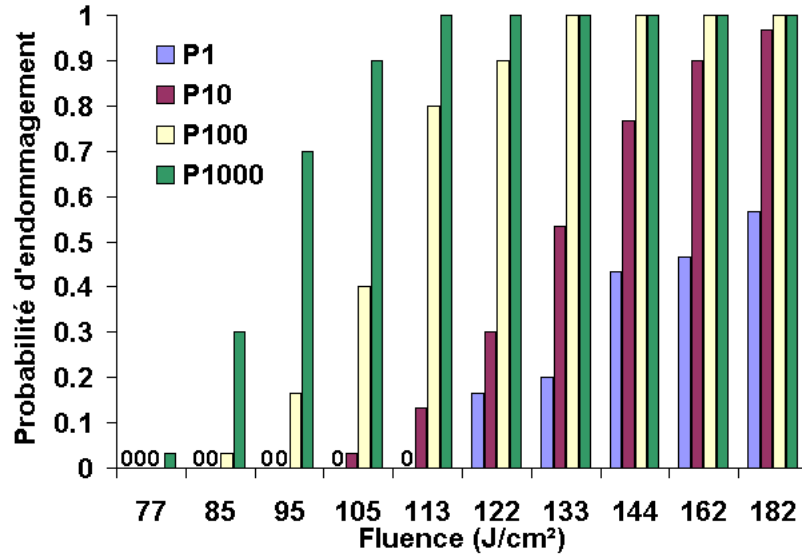


FIG. 3.24 – probabilités d’endommagement après 1, 10, 100, 1000 tirs ( $P_1$ ,  $P_{10}$ ,  $P_{100}$ ,  $P_{1000}$  respectivement) mesurées dans le volume d’un verre de Suprasil à 1064nm

### Morphologie des endommagements

Dans la silice, l’endommagement de volume produit à la suite de tirs répétés, a une taille semblable à celui apparaissant lors d’un tir unique. Le microscope X1000 mis en place sur le banc, a clairement mis en évidence qu’aucun signe précurseur de cet endommagement, ne pouvait être détecté (figure 3.25) de cette façon.

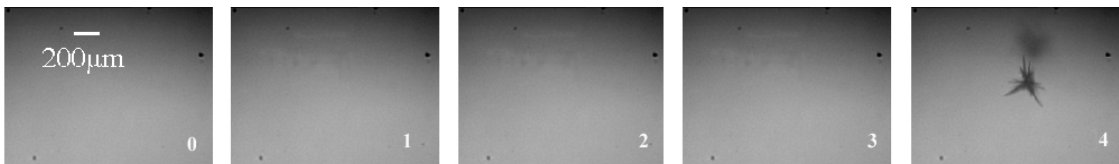


FIG. 3.25 – Tirs successifs dans le volume d’un verre d’Herasil ( $\lambda = 1064nm$ ,  $\Phi = 12\mu m$ )

D’après ces observations, si la matière se modifie lors de tirs successifs sous seuil, c’est donc de manière microscopique (invisible au microscope optique).

### 3.5.2 Etude de la durée de vie des défauts

#### Dépendance du seuil des défauts au nombre de tirs

Considérons maintenant l'hypothèse selon laquelle les défauts claquant au bout d'un seul tir sont les mêmes que ceux claquant au bout de M tirs à une énergie inférieure. Ceci implique que le seuil de claquage des défauts que nous avons appelé T dans la partie 3.2 dépend du nombre de tirs M :

$$T = T(M) \quad (3.24)$$

#### Probabilité d'endommagement en multicoups

Dans ce cas, la probabilité d'endommagement dans le volume du matériau peut s'exprimer à partir de l'équation 3.14, en fonction de la densité des défauts et du seuil T(M) de la façon suivante :

$$p(F) = 1 - e \left( -d \frac{4}{3} \pi w_0^2 z_R \left[ \frac{\left( \sqrt{\frac{F}{T(M)} - 1} \right)^3}{6} + \left( \sqrt{\frac{F}{T(M)} - 1} \right) - \arctan \left( \sqrt{\frac{F}{T(M)} - 1} \right) \right] \right) \quad (3.25)$$

d étant la densité volumique des défauts. Cette densité est connue puisqu'elle a été déterminée dans la partie 3.4 à partir des courbes de probabilité d'endommagement 1-on-1. L'étude des probabilités d'endommagement S-on-1 va donc nous permettre d'en déduire une expression du seuil T en fonction du nombre de tirs M.

Sur la figure 3.26 et 3.27, nous représentons les mesures des probabilités d'endommagement en fonction de la densité d'énergie et du nombre de tirs répétés M, ainsi que l'ajustement des données expérimentales par le modèle défini dans l'équation 3.25.

L'ajustement des données par le modèle nous permet de déterminer le seuil T des défauts en fonction du nombre de tirs M vus par ces défauts. Ces valeurs sont données dans la figure 3.28, pour les deux types de verres.

Nous pouvons remarquer que ces données peuvent être ajustées grâce à une loi logarithmique (figure 3.28). Ceci nous permet d'obtenir une expression du seuil en fonction du nombre de tirs pour un matériau donné :

$$T(N) = -6,5 \ln(M) + 114 \text{ pour le Suprasil} \quad (3.26)$$

$$T(N) = -4 \ln(M) + 74 \text{ pour le BK7} \quad (3.27)$$

Si l'on suppose que le comportement est le même lors d'un nombre de tirs plus grand, il est ainsi possible d'estimer la durée de vie des optiques soumises à un grand nombre de tirs répétés. Cependant si les équations 3.26 sont valables pour quelques milliers voire quelques dizaines de milliers de tirs, il semble évident que

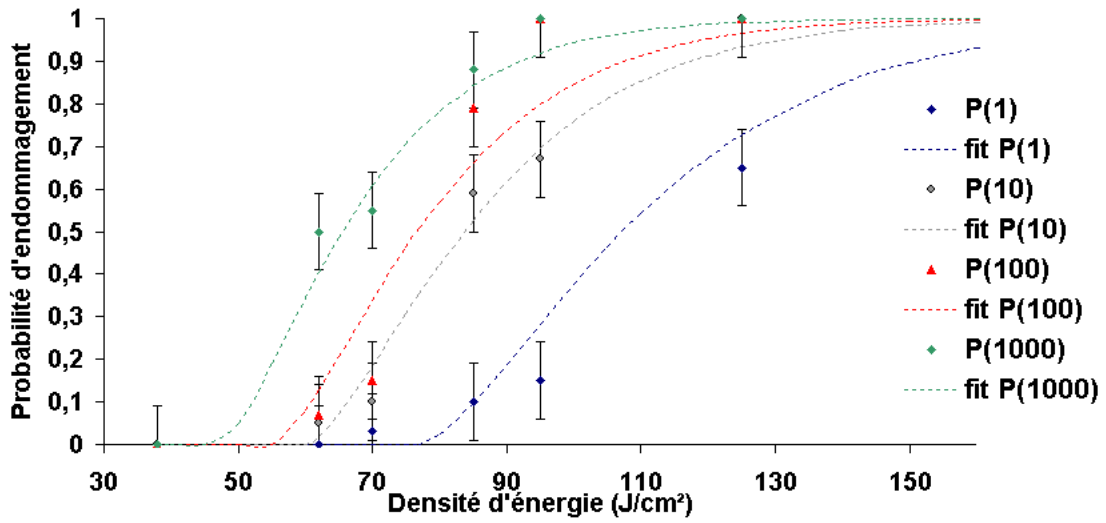


FIG. 3.26 – Courbes de probabilités d'endommagement après 1, 10, 100, 1000 tirs ( $P_1$ ,  $P_{10}$ ,  $P_{100}$ ,  $P_{1000}$  respectivement) mesurées dans le volume d'un verre de BK7 à 1064nm, et ajustement par le modèle (équation 3.25)

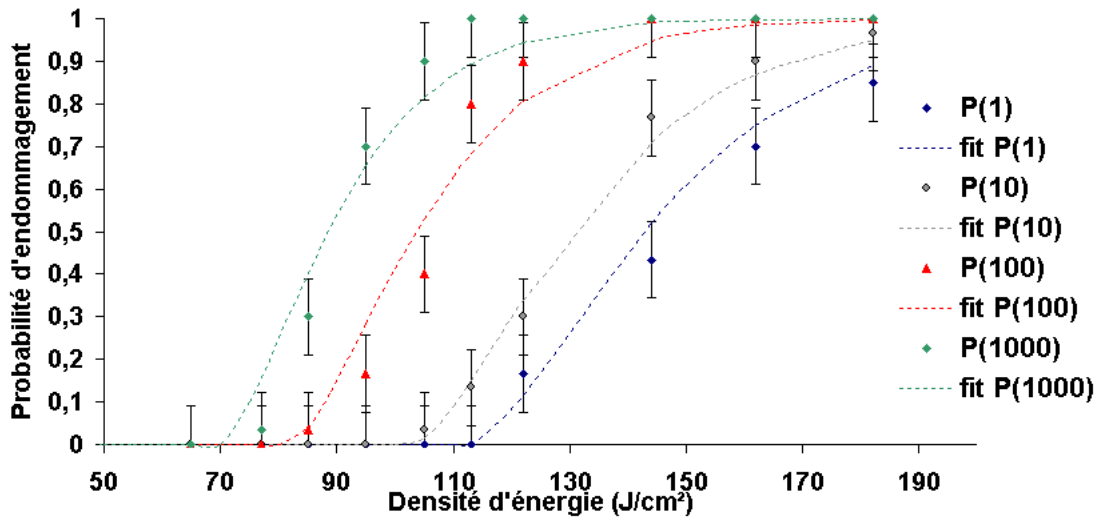


FIG. 3.27 – Courbes de probabilités d'endommagement après 1, 10, 100, 1000 tirs ( $P_1$ ,  $P_{10}$ ,  $P_{100}$ ,  $P_{1000}$  respectivement) mesurées dans le volume d'un verre de silice Suprasil à 1064nm, et ajustement par le modèle (équation 3.25)

le comportement doit changer pour un nombre de tirs plus important. Toutefois il est très difficile d'effectuer des millions de tir étant données les durées d'expérience nécessaires aux fréquences de tir que nous utilisons.

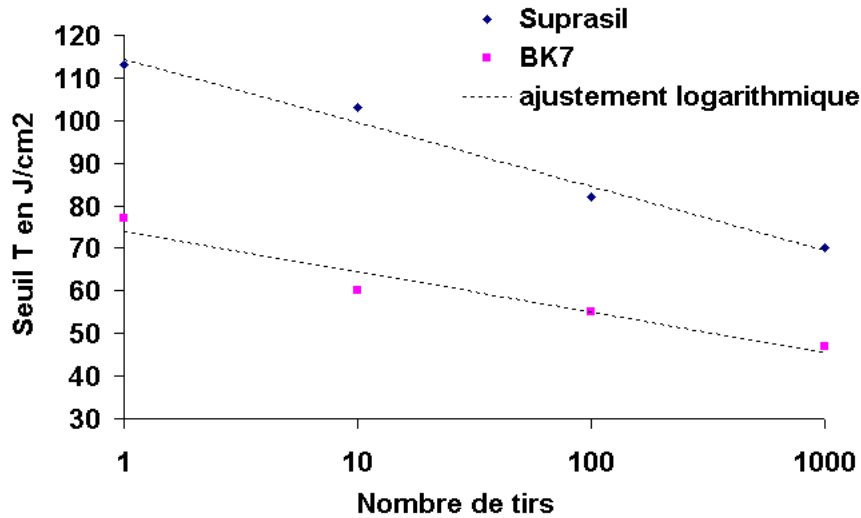


FIG. 3.28 – Seuil bas d'endommagement du BK7 et du Suprasil en fonction du nombre de tirs

### Bilan

D'après les résultats précédents, l'origine de la "fatigue" du matériau lors de tirs répétés pourrait être attribuée au même type de défauts que lors d'un tir unique. Le mécanisme d'endommagement peut être séparé en deux phases : tout d'abord un "pré-endommagement" des défauts lors des tirs répétés sous seuil. L'évolution de ces défauts permettrait dans un deuxième temps d'initier un endommagement du même type que lors d'un tir unique, mais à une énergie plus faible.

La méthode que nous avons utilisée, basée sur un ajustement des courbes de probabilités d'endommagement par un modèle fondé sur la présence de défauts réagissant différemment suivant le nombre de tirs a permis de déterminer précisément la variation du seuil en fonction du nombre de tirs. Ces mesures ont permis de montrer une dépendance logarithmique de ce seuil, dans la gamme des milliers de tirs.

Ces travaux ont été effectués à 1064nm, des études similaires vont évidemment être effectués par la suite à 355nm.

## 3.6 Corrélation à l'endommagement électrostatique

### 3.6.1 Présentation de l'étude

Nous avons vu que les seuils d'endommagements étaient de  $100J/cm^2$  et  $40J/cm^2$  pour le volume et la surface de la silice, respectivement. En terme de

champ électrique, on obtient des seuils de  $1,4 \cdot 10^8 V/m$  et  $5,6 \cdot 10^7 V/m$  respectivement. Bien que les phénomènes d'endommagement ne soient pas nécessairement attribués à un claquage diélectrique, nous avons voulu comparer nos résultats à ceux obtenus en appliquant une tension sur un échantillon. En d'autres termes, nous avons voulu comparer une courbe de seuil électrostatique aux courbes obtenues avec l'impulsion laser. Si ces phénomènes sont à priori très différents, nous verrons que les résultats obtenus présentent un intérêt potentiel, même s'il faut rester prudent et modeste.

Nous avons choisi de réaliser cette étude sur des couches minces de silice. En effet le matériel, et les tensions disponibles ne nous ont pas permis de claquer des verres de silice massive, dont les épaisseurs minimum à notre disposition étaient de  $100 \mu m$ . Si l'on suppose une valeur de claquage de l'ordre de quelques  $10^8 V/m$  [108], les tensions à appliquer sur ces verres doivent dépasser plusieurs milliers de Volts. Pour rester dans des valeurs de tensions raisonnables, nous avons donc utilisé des couches de silice de quelques dizaines à quelques centaines de nanomètres, dont la fabrication particulière est décrite dans la partie suivante.

#### 3.6.2 Préparation des échantillons

##### Principe

La principale contrainte lors de la préparation des échantillons est de pouvoir appliquer une différence de potentiel sur l'épaisseur de la couche de silice. Pour répondre à ce critère, nous avons choisi d'utiliser une technique utilisée durant la thèse de R. Parmentier [109] : la couche de silice est déposée sur une couche métallique servant d'électrode (figure 3.29). Un masquage réalisé durant le dépôt permet de préserver une partie de la couche métallique pour la relier à la masse.

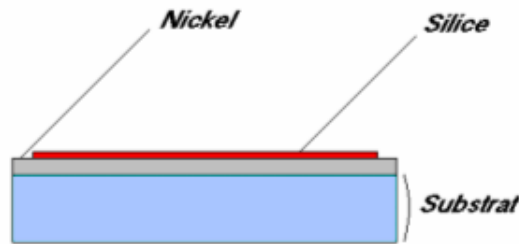


FIG. 3.29 – Schéma de principe des échantillons

L'avantage de l'utilisation de couches minces est la possibilité de faire varier facilement et précisément l'épaisseur. Nous avons donc décidé de fabriquer 3 échantillons d'épaisseurs différentes :

- une couche de silice d'épaisseur 50nm



- une couche de silice d'épaisseur 100nm
- une couche de silice d'épaisseur 500nm

### Fabrication

Le substrat est un verre de BK7, avec un polissage optique. La couche métallique est une couche de nickel épaisse (environ 500nm) déposée par EBD (Electron Beam Deposition). Cette méthode nous permet d'obtenir une couche opaque épaisse et relativement dense qui sera très adhérente sur le substrat.

La couche de silice est déposée par IP (Ion Plating), cette technique nous permet d'obtenir des couches denses et qui adhéreront parfaitement à la couche de Nickel. Le dépôt de la couche de silice ne se fait pas sur toute la surface de nickel, mais à travers des masques (figure 3.30).

Une photographie de ces échantillons est présentée figure 3.30.

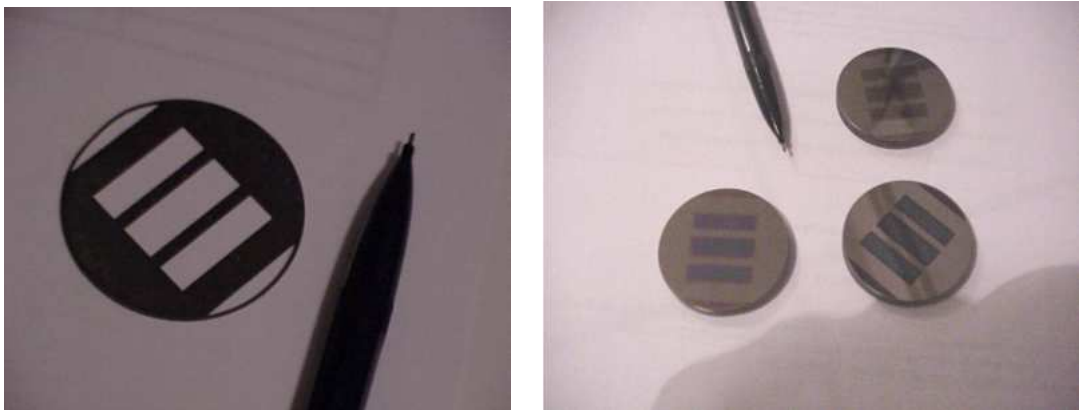


FIG. 3.30 – Photographies du masque utilisé pour le dépôt des couches de silice (à gauche), et des trois échantillons d'épaisseurs différentes réalisés (à droite)

### 3.6.3 Tests de claquage électrique des échantillons

#### Dispositif de mesure

Le dispositif expérimental se compose d'un capacimètre permettant d'appliquer des différences de potentiel allant jusqu'à 100V tout en contrôlant les valeurs de capacité et de résistance de la couche mince de silice. Cet appareil est relié à des micro-pointes utilisées pour la micro-électronique, qui permettent d'appliquer la tension. Ces micro-pointes sont montées sur un dispositif qui permet de régler avec précision la position, la hauteur ou encore la force d'appui de ces pointes (figure 3.31).

Nous définirons l'endommagement comme l'apparition d'un court circuit entre les deux pointes, mesuré grâce à cet appareillage.



FIG. 3.31 – Photographie des micro-pointes appliquées sur un échantillon, et du capacité-mètre délivrant la tension.

#### Problème du contact

L'intérêt d'utiliser ces micro-pointes est de pouvoir mener une étude localisée, de la même façon que celle menée sur le banc d'endommagement laser. Cependant il est important de poser le problème de l'application des pointes : en effet les couches étant très fines, un appui trop important risquerait d'endommager la couche avant même l'apparition d'un claquage, à l'inverse un appui trop faible pourrait provoquer un mauvais contact et fausser également les mesures.

Notre première approche a été de placer un intermédiaire conducteur entre la pointe et la couche de silice, de façon à réaliser un bon contact sans pour autant endommager la couche. Il est à noter que cet intermédiaire doit être de petite taille pour rester dans les conditions de test localisé ; de plus cette taille doit être contrôlable de manière à pouvoir déterminer l'influence de la surface de contact sur les valeurs de tension de claquage. Pour cela nous utilisons une colle conductrice, nous permettant de réaliser des électrodes d'une taille de  $500\mu\text{m}$ .

Les tests de claquage avec ces électrodes montrent que les valeurs de tension de claquage obtenues sont similaires à celles relevées en utilisant directement la micro-pointe plaquée sur la silice. Nous pouvons donc supposer que le contact pointe/silice est correct et par la suite utiliser ces pointes pour tracer des courbes de probabilité d'endommagement en effectuant une statistique sur l'ensemble de l'échantillon.

#### 3.6.4 Résultats expérimentaux

La première observation que nous avons faite sur ces échantillons est l'existence d'une dispersion des valeurs de claquage obtenues. De plus nous notons des différences de tension de claquage entre les différentes épaisseurs.

Pour caractériser précisément ces échantillons, nous avons donc choisi de les tester

en utilisant la procédure 1-on-1, de la même façon que sur le banc d'endommagement laser : en testant plusieurs sites à une tension fixe, nous estimons la probabilité d'endommagement à cette tension. En répétant cette mesure pour plusieurs tensions, nous pouvons tracer la probabilité d'endommagement en fonction de la différence de potentiel appliquée entre les deux micro-pointes.

Les courbes de seuil de claquage obtenues sont représentées sur la figure 3.33. Notons que les tensions disponibles sur le dispositif ne nous ont pas permis de claquage la couche de 500nm, ni d'explorer toute les valeurs de claquage de la couche de 100nm.

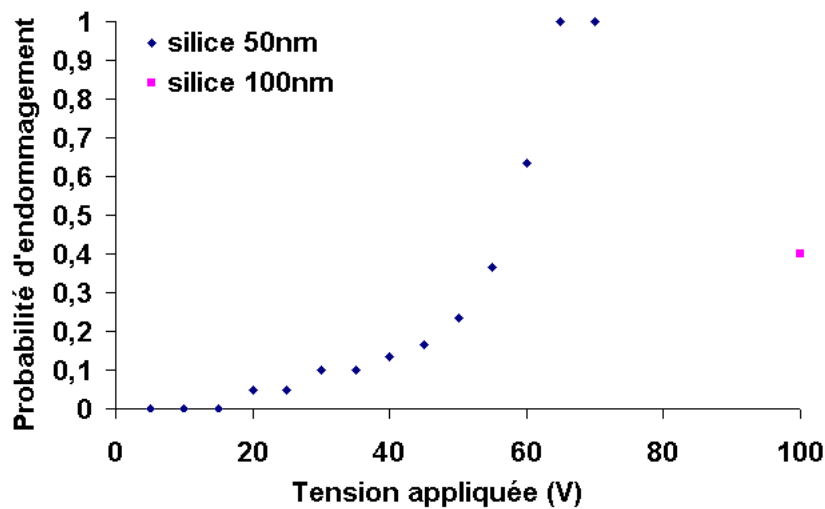


FIG. 3.32 – Courbes de probabilité d'endommagement en fonction de la tension appliquée sur les couches de silice

### 3.6.5 Analyse des résultats : comparaison à l'endommagement laser

#### Dispersion des seuils

Le premier résultat intéressant est la dispersion des seuils d'endommagement obtenus, qui peut s'interpréter comme une signature de l'inhomogénéité du matériau. Comme dans le cas d'une irradiation laser, l'initiation de l'endommagement peut alors être attribuée à la présence de défauts dans la matière.

La forme de la courbe quant à elle semble plus difficile à interpréter. En effet cette forme doit être liée à la géométrie de la pointe, que nous ne connaissons pas, et à la répartition du champ électrique qui en résulte dans la couche, de la même façon que les courbes d'endommagement laser sont liées à la forme du faisceau.

### Morphologie des endommagements

Une autre similitude dans les phénomènes observés se situe au niveau de la morphologie des endommagements créés. En effet le claquage électrique, comme pour le cas du laser focalisé, est irréversible et se caractérise par la formation d'un cratère sous la pointe (figure 3.33).

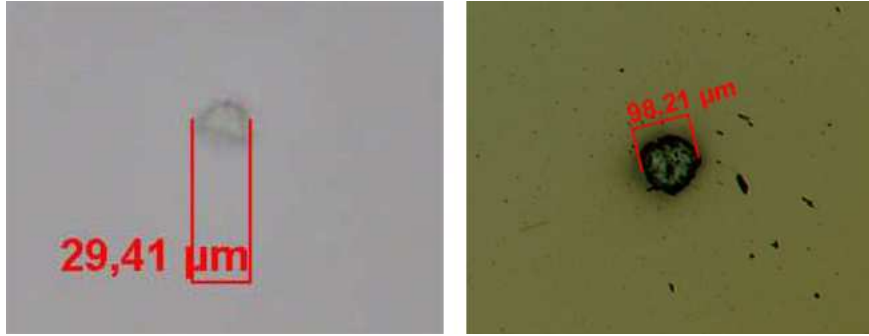


FIG. 3.33 – Comparaison des morphologies d'endommagement sur la silice, par irradiation laser (gauche) et par claquage électrique (droite)

Remarquons qu'il a été vérifié que ces cratères ne sont pas dus à une action mécanique de la pointe, mais sont bien une conséquence du claquage électrique. Nous avons vu que les endommagements lasers et électriques peuvent être initiés sur des défauts de la couche et produisent des effets similaires. Pour aller plus loin dans la comparaison, nous allons maintenant calculer les valeurs du champ électrique dans les deux cas.

### Comparaison des valeurs de claquage

Les valeurs de claquage des couches de silice sont de l'ordre de  $10J/cm^2$  pour une durée d'impulsion de 7ns [1]. La valeur du champ électrique correspondant peut être calculée grâce à l'équation 2.16 du chapitre 2. Cette valeur est alors de :

$$1,4 \cdot 10^7 V/m \quad (3.28)$$

Dans le cas d'une tension appliquée sur l'épaisseur de la couche, le champ peut se calculer en première approximation de la façon suivante :

$$E = \frac{V}{e} \quad (3.29)$$

Bien que ce calcul corresponde au cas de deux plaques conductrices parallèles, et non pas d'une pointe et d'une plaque parallèle, nous allons l'utiliser pour estimer le champ maximal sous la pointe. En effet d'après les résultats précédents, les valeurs des tensions de claquage changent peu avec la taille de l'électrode.

En utilisant 3.29 le champ de claquage obtenu est de  $4.10^8 V/m$  pour une tension de 20V (seuil bas) sur une épaisseur de 50nm. Cependant ce champ électrostatique est calculé dans le vide, cette valeur dans la silice doit être corrigée par la permittivité relative de la silice, c'est à dire divisé par  $\epsilon_r$ . La permittivité relative de la silice étant d'environ 6 [110], la valeur corrigée du champ électrostatique de claquage est de :

$$6, 7.10^7 V/m \quad (3.30)$$

La valeur trouvée est assez proche de celle du champ de claquage laser. Cependant, compte tenu des différentes hypothèses et approximations effectuées lors de ce calcul, cette valeur est à prendre avec précaution. On retiendra seulement que les ordres de grandeurs sont similaires pour les deux phénomènes.

### 3.6.6 Bilan de l'étude

Cette comparaison entre l'endommagement laser et l'endommagement électrostatique dans des couches de silice, nous permet de dégager deux premiers résultats intéressants :

- les valeurs du champ de claquage sont du même ordre de grandeur
- la réalisation de tests localisés (faisceau de petite dimension et pointe fine) permet de mettre en évidence dans les deux cas une distribution des seuils d'endommagement qui peut être attribuée à la présence de défauts initiateurs.

Actuellement nous poursuivons ces travaux. En toute rigueur il faudrait aussi prendre en compte le temps d'application de la tension.

Ce travail consistait en une étude de faisabilité. Pour aller plus loin dans cette comparaison, et donc progresser dans la compréhension des mécanismes, des expériences et des calculs complémentaires devront être menés (utilisation de tensions plus importantes pour tester de la silice massive, calcul de la répartition du champ électrostatique. . . )

## 3.7 Conclusion

Le dispositif de mesure de tenue au flux présenté dans le chapitre 2 nous a permis de caractériser finement la tenue au flux de nombreux matériaux, et de constituer ainsi une base de données importante.

Les résultats ont pu être expliqués grâce à l'utilisation d'un modèle, basé sur l'hypothèse de nano-centres initiateurs de l'endommagement laser. Ce modèle a été adapté à notre étude pour permettre d'analyser le cas des surfaces, des volumes ou des couches minces. Après avoir validé ce modèle, par l'étude de liquides calibrés, nous avons pu ainsi valider le concept de nano-centres, initiateurs de l'endommagement laser dans les verres.

Les densités de défauts dans le volume des verres ont été estimées à quelques dizaines de défauts par  $100\mu m^3$ , et ce à 1064nm et 355nm. En ce qui concerne les surfaces, nous avons mis en évidence des corrélations entre les processus de polissage et la présence de différentes sortes de défauts initiateurs. Dans le cas de couches de silice, les densités de défauts trouvées par l'ajustement des courbes de seuil (quelques dizaines par  $100\mu m^2$ ) ont montré un excellent accord avec celles estimées par analyse AFM.

D'autre part, une étude de la tenue au flux lors de tirs répétés dans les verres, a démontré que la diminution du seuil d'endommagement avec le nombre de tirs, pouvait être attribuée au même type de défauts que ceux provoquant l'endommagement lors de tirs uniques. Ces défauts évolueraient lors de tirs répétés sous seuil, pour atteindre un état permettant d'initier un endommagement du même type que lors d'un tir unique. Ces résultats nous ont permis d'établir une estimation de la durée de vie des optiques lors de tirs répétés, ce qui est majeur pour l'utilisation pratique de ces composants.

Au niveau des mécanismes d'endommagement, une comparaison originale à l'endommagement électrique a été initiée. Elle a mis en évidence le rôle du champ électrostatique dans l'initiation de l'endommagement sur des défauts du matériau.

*CHAPITRE 3. MODELISATION, ANALYSE ET INTERPRETATION DES  
COURBES DE SEUIL D'ENDOMMAGEMENT*

---

## Chapitre 4

# ETUDE DES SITES PRECURSEURS PAR UNE ANALYSE MORPHOLOGIQUE DES ENDOMMAGEMENTS

Pour aller plus loin dans notre investigation, nous réalisons une analyse des morphologies d'endommagement laser pour différents échantillons et dans différentes configurations de tir. Cette analyse a pour ambition d'obtenir des informations complémentaires sur l'origine des défauts précurseurs de l'endommagement, ainsi que sur les processus d'initiation et de croissance.

Une étude spécifique est également menée sur des échantillons de silice contaminés artificiellement par des "nano-défauts" métalliques permettant de simuler la présence de sites initiateurs.



## 4.1 Introduction

Dans le chapitre précédent, la responsabilité de centres précurseurs de taille nanométrique (indétectable par des techniques classiques) a été clairement mise en évidence. Afin d'aller plus loin dans la compréhension des phénomènes mis en jeu lors de l'initiation de l'endommagement par ces précurseurs, une étude sur la morphologie des impacts a été réalisée.

Pour cela nous effectuons des tirs localisés sur la surface de différents échantillons que nous analysons *in situ* ou *à posteriori*, avec des outils de mesure tels que la microscopie à force atomique (AFM), la microscopie optique en mode Nomarski, champ sombre ou champ clair. L'intérêt et l'aspect original de cette étude résident dans l'utilisation de faisceaux très focalisés qui vont nous permettre de viser au choix des zones exemptes de tout défaut visible (nano-défauts) ou des défauts localisés (comme des rayures). Un contrôle complet des paramètres du laser nous permettra de révéler différents comportements suivant les conditions de tir.

Dans un premier temps nous présenterons les études menées sur différents verres, et plus particulièrement sur la silice (Hérasil et Suprasil) et le BK7. Les morphologies d'endommagements obtenues à différentes longueurs d'onde et avec différentes tailles de spot seront étudiées en face avant et face arrière. Le cas de couches minces de silice sera également traité et comparé, grâce à l'analyse des impacts.

Cependant, s'il est avéré que ces endommagements s'initient sur des défauts présents dans la matière, la nature et la taille de ces défauts n'est pas connue. Pour mieux comprendre le mécanisme d'initiation de ces endommagements, nous présenterons dans un deuxième temps une étude menée en collaboration avec le CEA [111] qui vise à introduire artificiellement des défauts connus dans la silice (particules d'or de quelques nanomètres à quelques centaines de nanomètres) et à étudier leur comportement sous flux. L'analyse de ces endommagements dans différentes conditions de tirs nous permettra de discuter des mécanismes d'endommagements initiés par des particules absorbantes nanométriques.

Pour finir, nous traiterons le cas de la croissance des endommagements sous tir répétés. Cette analyse est importante puisque la croissance des dommages limite souvent la durée de vie des composants.

Ces études étant basées sur des observations effectuées par microscopie à force atomique, nous invitons le lecteur à se reporter à l'annexe D, dans laquelle le principe de fonctionnement de ce dispositif est décrit, ainsi que les différents artefacts de mesure liés à l'utilisation spécifique de cet appareil pour la caractérisation d'endommagements.

## 4.2 Endommagements sur la silice

Les morphologies d'endommagement laser observées lors de tirs avec des faisceaux focalisés sur la face avant ou arrière des verres, sont très différents comme nous pouvons le voir sur la figure 4.1.

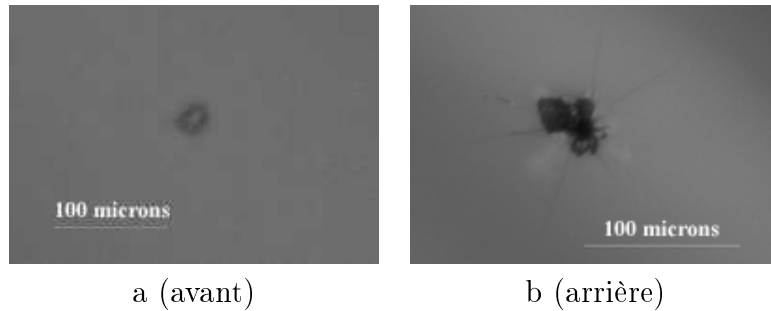


FIG. 4.1 – a : endommagement sur la face avant d'un verre de silice Hérasil (impulsion de 7ns à 1064nm, taille du spot : 25microns); b : endommagement sur la face arrière d'un verre de silice Hérasil (impulsion de 7ns à 1064nm, taille du spot : 25microns)

Pour tenter de comprendre les mécanismes de formation de ces différents endommagements, nous allons les analyser dans différentes conditions de tirs et pour différents états de surface, en distinguant le cas de la face avant et arrière. Ces morphologies seront également comparées à celles observées sur des couches minces de silice déposées par EBD (Electron Beam Deposition).

### 4.2.1 Cas de la face avant

Nous savons que l'état de surface est important en regard de la tenue au flux des surfaces (voir chapitre 3). Nous distinguerons donc dans cette partie le cas d'endommagements sur des zones exemptes de tout défaut visible avant tir, du cas de l'endommagement sur des défauts résiduels de polissage ou de nettoyage, visibles avant tir. En effet comme nous allons le voir, les morphologies observées pour ces différents cas sont sensiblement différentes.

#### Morphologies d'endommagement observées sur des zones exemptes de défaut visible

Lors d'un tir sur une zone exempte de défaut visible d'un verre de silice ou de BK7, avec un faisceau focalisé de quelques microns à quelques dizaines de microns, il se forme un cratère sur la surface du verre. Ce cratère a un diamètre de dimension inférieure à la taille du faisceau laser pour de faibles énergies (figure 4.2), mais pouvant atteindre la taille du faisceau pour un tir à forte énergie (au

dessus du seuil haut d'endommagement).

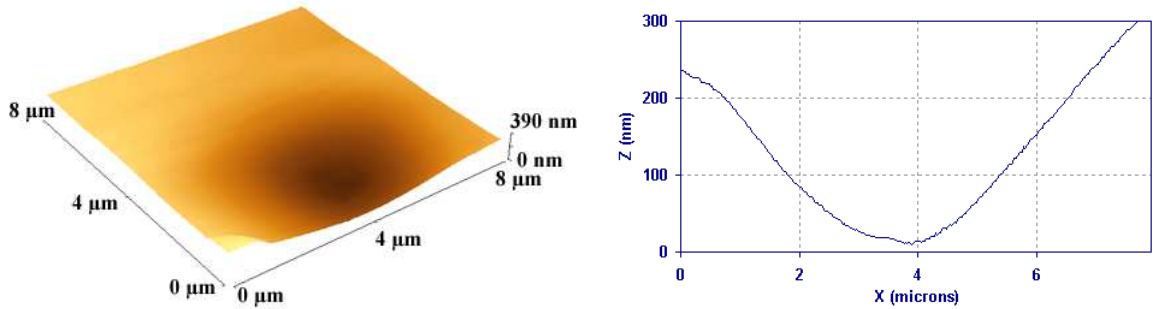


FIG. 4.2 – Image AFM et profil d'un endommagement à la surface d'un verre de BK7, ( $\lambda = 1064nm$ ,  $\Phi = 12\mu m$ )

Le cratère ainsi formé semble reproduire la forme du faisceau, c'est à dire gaussien dans notre cas (image 4.2). Dans le cas de l'existence de points chauds dans le faisceau, on retrouve également la forme du faisceau (figure 4.3).

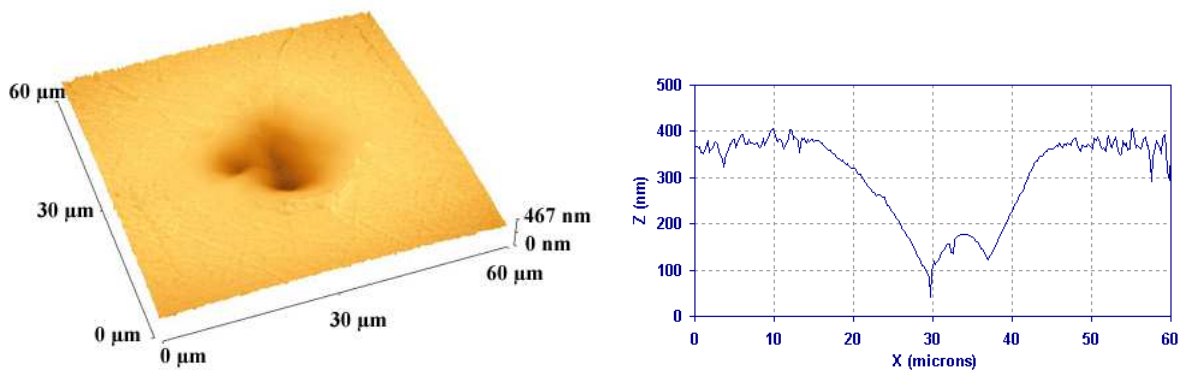


FIG. 4.3 – Image AFM et profil d'un endommagement à la surface d'un verre de silice, ( $\lambda = 1064nm$ , image du faisceau présenté dans la figure 2.9 du chapitre 2)

Cette observation peut signifier que si l'endommagement s'initie sur un nano-défaut sur ou sous la surface de la silice, l'énergie totale du faisceau participe à l'endommagement. De plus la disparition de matière semble indiquer que le matériau a été ablaté ou vaporisé. Nous pouvons alors envisager différentes hypothèses pour expliquer ces observations.

L'énergie du faisceau pourrait être absorbée par le plasma se formant et s'étendant sous le faisceau, dans l'air, après initiation sur le défaut. Ce plasma en absorbant l'énergie du faisceau et en s'échauffant, serait alors responsable de la vaporisation de la silice [38].

L'énergie du faisceau pourrait également être absorbée par la silice au voisinage du défaut, si l'on considère des changements d'absorption de la silice lors de son échauffement [112, 22].

Nous pouvons d'autre part remarquer que sur les différents verres endommagés en face avant avec un faisceau gaussien, les profondeurs des cratères formés se situent tous entre 100nm et 300nm. En considérant le fait que le maximum d'énergie se situe sur plusieurs dizaines de microns de profondeur (du fait de la profondeur de champ du faisceau), il semblerait donc que les défauts initiateurs de l'endommagement laser en surface, se situeraient au maximum à une centaine de nanomètres sous la surface.

### Comportements à différentes longueurs d'onde

Les différentes mesures face avant que nous avons effectuées à 532nm et 355nm révèlent des comportements similaires à ceux observés à 1064 nm. Il ne semble donc pas que d'autres mécanismes soient mis en jeu pour ces différentes longueurs d'onde.

### Morphologies d'endommagement en présence de rayures

La surface d'un verre nu présente de nombreux défauts, notamment des rayures, pouvant être dues au processus de polissage ou de nettoyage. Ceci implique une forte dépendance de la tenue au flux par rapport au processus de polissage, comme nous l'avons mis en évidence partie 3.4. En effet, nous illustrons ce propos figure 4.4a et b, par deux endommagements initiés sur des rayures.

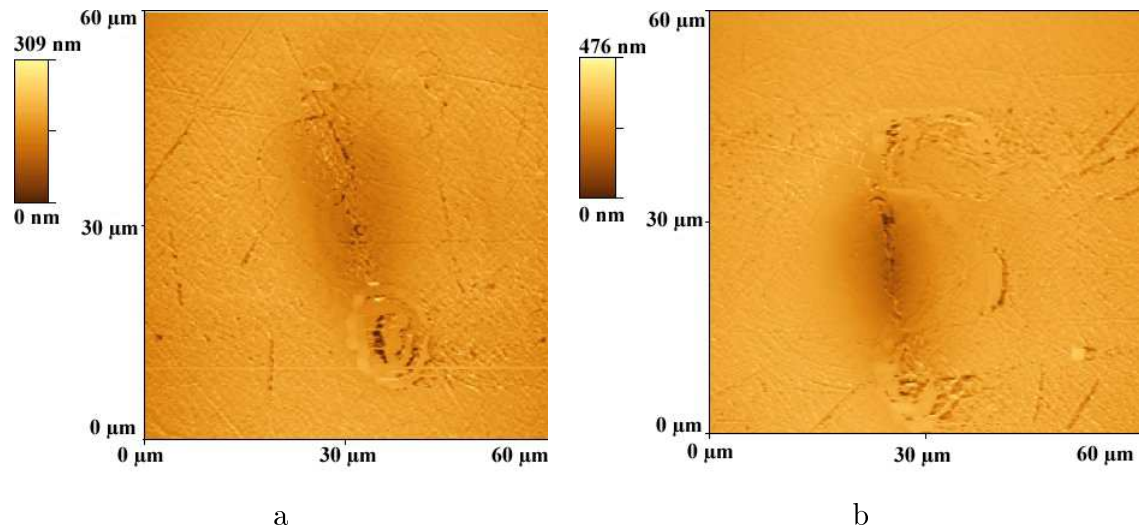


FIG. 4.4 – Images AFM de deux endommagements localisés au niveau d'une rayure sur la surface d'un verre de silice, ( $\lambda = 1064nm$ ,  $\Phi = 25\mu m$ )

Sur ces images, il semble que l'endommagement se soit initié et propagé le long d'une rayure à la surface du verre. Remarquons que ceci intervient pour des valeurs d'énergie assez proches du seuil bas d'endommagement. En effet, pour des énergies plus importantes, on observe la formation d'un cratère important, comme dans le cas précédent.

Ceci peut s'expliquer par une augmentation locale du champ le long de cette rayure, comme cela a été montré par différents modèles (voir partie 1.5). Des expériences récentes sur des rayures artificielles corroborent également ce fait [113].

Les sites initiateurs de l'endommagement sur les verres peuvent donc être tout aussi bien des rayures ou des micro-fractures sous la surface du verre, que des résidus de polissage nanométriques.

#### 4.2.2 Cas de la face arrière

L'endommagement en face arrière des verres se traduit par une éjection de matière. Dans cette configuration la taille de l'endommagement peut être largement supérieure à la taille du faisceau (figure 4.5 a). De plus, on ne retrouve plus l'allure régulière et reproduisant la forme du faisceau, que l'on obtenait face avant. Ajoutons également que sur le nombre de cas que nous avons traité, nous n'avons pas retrouvé d'endommagement initié par des rayures visibles, à faible énergie, comme dans le cas de la face avant.

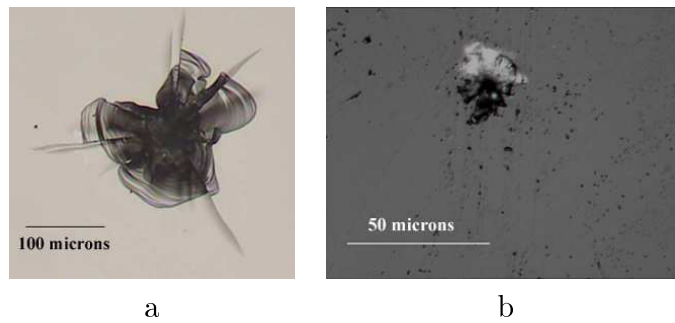


FIG. 4.5 – Endommagements sur la face arrière d'un verre de BK7 ( $\lambda = 1064nm$ ), a :  $\Phi = 25\mu m$ ; b :  $\Phi = 12\mu m$

Le mécanisme associé à ce type de morphologie peut être interprété comme étant lié à la formation d'un plasma confiné dans le verre lors de l'irradiation, dont la pression provoquerait un écaillage [38].

Pour étudier ce type de comportement nous avons cherché à nous rapprocher des conditions d'initiation, en nous plaçant dans des configurations permettant d'obtenir les endommagements les plus petits possibles. L'utilisation de faisceaux focalisés sur une dizaine de microns, et à des énergies proches du seuil bas, permet d'obtenir au minimum des endommagements face arrière de l'ordre de la taille du

faisceau (figure 4.5 b). Un profil AFM effectué sur cet endommagement montre que la profondeur de l'endommagement est de l'ordre de 2 microns (figure 4.6), ce qui est nettement plus profond que les endommagements de la face avant, obtenus avec des énergies comparables.

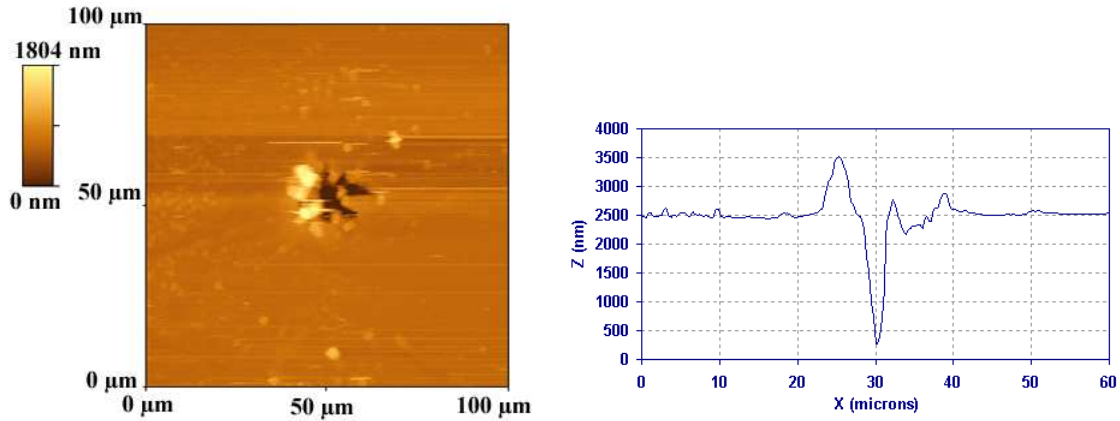


FIG. 4.6 – Image AFM et profil d'un endommagement sur la face arrière d'un verre de BK7, ( $\lambda = 1064nm$ ,  $\Phi = 12\mu m$ )

Une statistique effectuée sur une dizaine de tirs montre que contrairement à la face avant, cette profondeur n'est pas reproductible, et varie de quelques centaines de nanomètres à plus de 5 microns. Il apparaît donc un caractère aléatoire sur le profil des cratères que nous ne sommes pas encore parvenu à interpréter.

### 4.2.3 Cas d'une couche mince de silice

Le cas d'un endommagement sur une couche mince de silice est très différent de celui de la silice massive. Sur la figure 4.7, nous pouvons observer les conséquences d'un endommagement sur une couche de silice déposée par EBD, irradiée avec un faisceau de  $45\mu m$  de diamètre, et à une énergie proche du seuil bas d'endommagement.

Les images AFM révèlent de petits cratères localisés sous le spot d'irradiation. Nous pouvons penser que ces cratères sont liés à la présence de défauts inclus dans la couche mince. Ces défauts étant de toute évidence différents de ceux de la silice massive, et les propriétés de la matrice sensiblement différentes, la morphologie observée a donc des raisons d'être différente de celle observée en surface des verres de silice.

Les nombreuses images AFM effectuées sur ces couches montrent qu'il y a toujours entre 1 et 10 défauts sous le spot. Il est maintenant intéressant de comparer ces

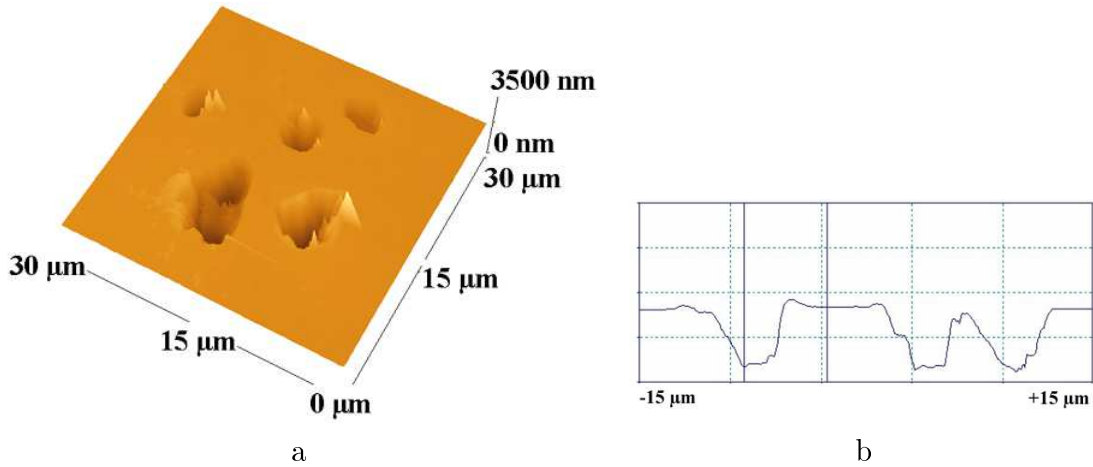


FIG. 4.7 – Image AFM et profil d’un endommagement sur une couche de silice déposée par EBD ( $\lambda = 1064nm$ ,  $\Phi = 75\mu m$ )

valeurs à celles déduites de l’étude des courbes de seuil (partie 3.4.4). Une telle courbe est représentée figure 3.22. Bien sûr, pour tracer cette courbe, un spot de plus petite dimension a été utilisé, pour obtenir une distribution satisfaisante des seuils d’endommagement. La densité de défauts estimée par l’ajustement du modèle aux courbes de seuil est de  $3.10^{-3}$  à  $8.10^{-3}$  défauts par  $\mu m^2$ . Si l’on rapporte maintenant cette densité à un carré de  $30\mu m$  par  $30\mu m$ , correspondant à la taille de l’image AFM de la figure 4.7, le nombre de défauts sous cette surface est de 3 à 8. Ceci est en accord avec nos observations précédentes, et conforte à nouveau notre modèle.

#### 4.2.4 Bilan de l’étude

Au travers de ces observations de morphologies d’endommagement, nous avons pu dégager des tendances concernant les mécanismes.

En ce qui concerne la surface, nous avons vu que la forme des endommagements observés sur la face avant reproduisait la forme du faisceau laser focalisé. La disparition de la matière indique qu’une ablation ou une vaporisation de la matière a eu lieu. Les processus physiques mis en jeu après l’initiation sur un défaut, pourraient faire intervenir le plasma qui, en se formant et en s’échauffant dans l’air vaporiserait le matériau, ou bien une absorption de l’énergie incidente par la silice dont les propriétés absorbantes seraient modifiées. De part la profondeur des endommagements observés, les défauts surfaciques, susceptibles d’initier ces processus, seraient confinés à une centaine de nanomètres sous la surface. En prenant en compte cette épaisseur dans l’ajustement des courbes de seuil sur la surface de la silice, la densité de défaut peut être estimée à 1 défaut/ $\mu m^3$ , ce qui correspond à 10 défauts sous une surface de  $10\mu m^2$ .

Nous avons montré que des rayures ou des micro-fractures pourraient également

jouer le rôle de précurseurs, puisque nous avons montré qu'une rayure pouvait initier un endommagement.

Dans le cas de la face arrière, c'est le confinement du plasma dans le verre qui entraînerait une éjection de matière et la formation d'un endommagement différent de la face avant.

L'étude morphologique d'une couche de silice de  $SiO_2$  par microscopie à force atomique a permis de révéler la présence de défauts initiateurs de l'endommagement dans la silice en couche mince. Les densités de défauts estimées grâce à ces images sont en accord avec celles estimées par l'ajustement des courbes de seuil tracées sur ce matériau. Ce résultat est majeur puisqu'il met en accord l'observation morphologique de cratères à celle de densités de défauts initiateurs déduites des courbes de seuil expérimentales.

### 4.3 Etude de l'interaction laser avec des nanoparticules métalliques incluses dans de la silice

Nous avons vu que l'étude des morphologies peut nous fournir des renseignements sur les processus de l'endommagement laser. L'interprétation des résultats est toutefois difficile puisque la nature des précurseurs reste inconnue. Il apparaît donc intéressant d'introduire des défauts connus dans de la silice et d'observer l'initiation et la propagation de l'endommagement sur ces sites. Des expériences de ce type ont déjà été développées à l'Université de Rochester [114] et au Lawrence Livermore National Laboratory [113]; nous les avons évoquées dans la partie 1.5.

L'étude menée ici, est le fruit d'une collaboration initiée par H. Bercegol et développée par Jean-Luc Rullier dans le cadre du groupe de travail endommagement laser du CEA/DAM, entre le CEA (CEA CESTA, DPTA, et LETI), le LASIM (Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire -Lyon) et l'Institut Fresnel [115, 111, 22, 112].

Dans le cadre de cette collaboration, l'Institut Fresnel s'est plus particulièrement intéressé dans un premier temps à qualifier les différents échantillons. Cette qualification a consisté à déterminer la rugosité, l'épaisseur des couches déposées sur des particules d'or, et surtout à déterminer les tailles et distributions de ces particules avant endommagement. Dans un deuxième temps, une étude morphologique après irradiation localisée a été menée sur les différents types d'échantillons, à 1064 nm et 355 nm.



### 4.3.1 Présentation des échantillons, méthodes de fabrication

Les échantillons "modèles" contiennent des particules d'or insérées entre deux couches de silice, suivant le schéma de principe de la figure 4.8.

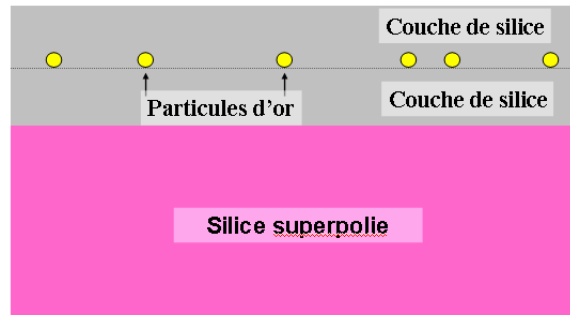


FIG. 4.8 – Schéma de principe des échantillons

Les deux couches de silice sont de nature identique, afin de reproduire une inclusion métallique dans un matériau homogène. La taille des billes et leur profondeur d'enfouissement peut être modifiée, grâce à l'utilisation de différentes techniques de fabrication décrites plus loin.

Nous garderons toutefois à l'esprit que le fait d'utiliser des couches minces nous éloigne sensiblement des propriétés des verres. La porosité des couches déposées par EBD (Electron Beam Deposition) est notamment très différente du cas de la silice massive.

#### Inclusions de billes d'or de 400 à 800 nm

Les cibles réalisées au LETI contiennent des billes d'or dont le diamètre varie entre 400 et 800 nm, recouvertes d'une couche de silice d'épaisseur égale à 2, 5 ou 10  $\mu m$ .

Les couches de silice sont fabriquées par évaporation classique (Electron Beam Deposition), et les billes d'or déposées ex-situ par "spin-coating". Pour ce dépôt de billes d'or, l'emploi de colloïdes a été évité, afin de ne pas polluer les particules d'or par des résidus de surfactants qui pourraient compliquer la compréhension et la modélisation des résultats expérimentaux. En effet ce problème a déjà été rencontré lors d'expériences similaires réalisées par Papernov & al.[114].

Cependant, un inconvénient difficile à contourner de la méthode est de conduire à la formation d'agrégats de billes (figure 4.9). Il nous faudra donc vérifier la taille des particules visées, afin de n'irradier que des billes uniques.

La densité de ces particules est difficile à estimer théoriquement, nous reviendrons sur ce point dans la partie 4.3.2.

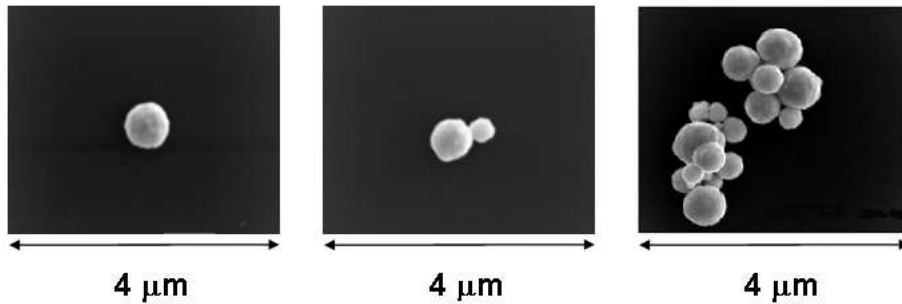


FIG. 4.9 – Observations MEB de la distribution des particules sur un substrat nu. Image tirées de la référence [22]

On pourra trouver plus de détails sur la technique de fabrication et la caractérisation des particules dans la référence : [22].

#### Inclusions de billes d'or de 3nm

Les échantillons fabriqués au LASIM possèdent des inclusions d'or de diamètre de l'ordre de 3 nm. L'épaisseur de la couche de silice qui les recouvre est de 130 nm.

Les couches de silice sont également déposées par une technique d'évaporation classique et les particules d'or sont fabriquées in-situ par une technique de dépôt assistée par laser. La distribution en taille de ces particules est donnée sur la figure 4.10. La densité de particules est contrôlée, ce qui a permis de fabriquer deux types d'échantillons, contenant respectivement 10 et 100 nanoparticules/ $\mu\text{m}^2$ .

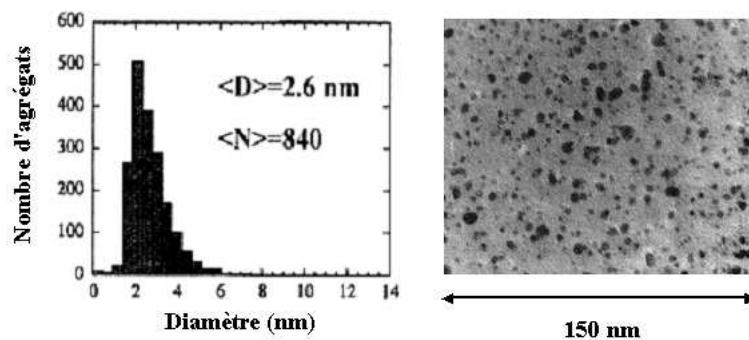


FIG. 4.10 – Image de microscopie électronique en transmission avec la distribution des tailles correspondante.  $\langle D \rangle$  est le diamètre moyen et  $\langle N \rangle$  le nombre moyen d'atomes par agrégat. Images tirées de la référence [111]

Des détails sur la technique de fabrication et la caractérisation des particules sont donnés dans les références [111, 112].

### 4.3.2 Caractérisation des cibles

#### Inclusions de plusieurs centaines de nanomètres

La présence de billes d'or sous la couche finale de silice se traduit par la formation d'un dôme à la surface de la couche, qui correspond à la réplique des particules par la couche de silice déposée (figure 4.11).

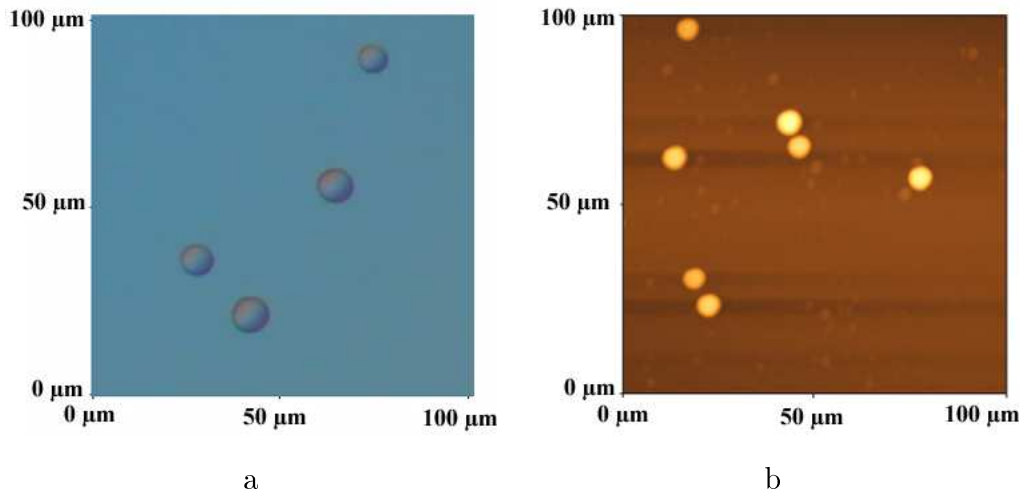


FIG. 4.11 – Observation des dômes sur la surface par microscopie Nomarsky (a) et AFM (b)

Il est possible de discriminer les billes d'or isolées des amas de billes ; pour cela il suffit de déplacer le plan de mise au point du microscope de la surface à l'interface entre les deux couches pour observer directement les billes (figure 4.12). Ceci nous permet également de différencier les dômes dus aux billes, de la pollution en surface, souvent importante sur ces échantillons.

L'inhomogénéité de densité liée aux conditions de fabrication permet d'étudier une particule isolée ou des groupes de particules.

La figure 4.13 représente un dôme isolé, observé par microscopie à force atomique.

A partir de la mesure de la hauteur de ce dôme, nous pouvons déduire facilement la taille des particules d'or (voir partie 1.5 sur les nodules). Une statistique effectuée sur un grand nombre de dômes nous permet de connaître la distribution en taille des billes : entre 400nm et 800nm (voir figure 4.14).

4.3. ETUDE DE L'INTERACTION LASER AVEC DES NANO-PARTICULES MÉTALLIQUES INCLUSES DANS DE LA SILICE

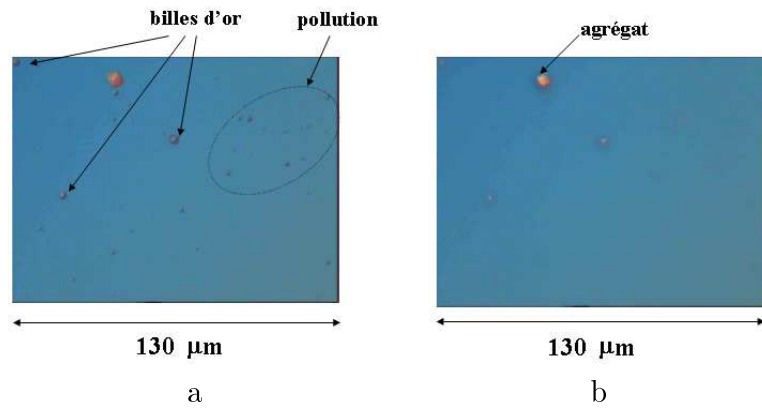


FIG. 4.12 – Observation de la surface d'un échantillon : sur la surface (a) et à l'interface (b)

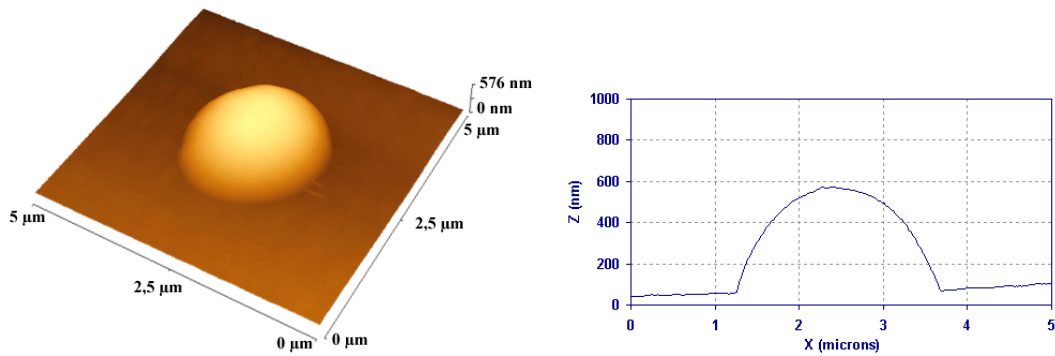


FIG. 4.13 – Image AFM et profil d'un dôme sur une couche de silice d'épaisseur deux microns, déposée sur les billes

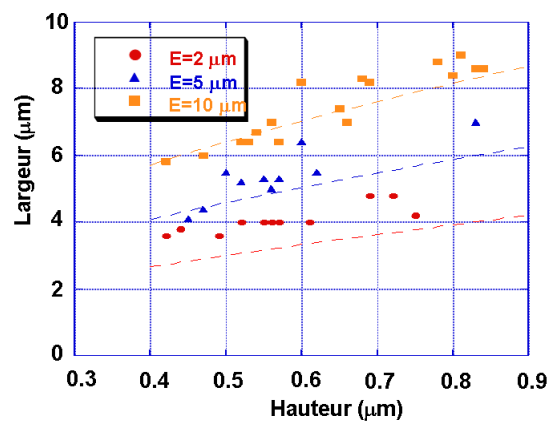


FIG. 4.14 – Etude statistique de la hauteur et de la largeur des dômes. Comparaison au modèle géométrique des nodules (lignes en pointillés).

### Inclusions nano-métriques

L'étude à posteriori de taille et de distribution est impossible sur ces échantillons : d'une part car on est en limite de résolution sur le microscope optique, et d'autre part car la pollution de l'échantillon nuit à l'observation. Au microscope à force atomique les billes ne sont pas non plus détectables car leur hauteur (3 nm) est noyée dans la rugosité de surface (image 4.15).

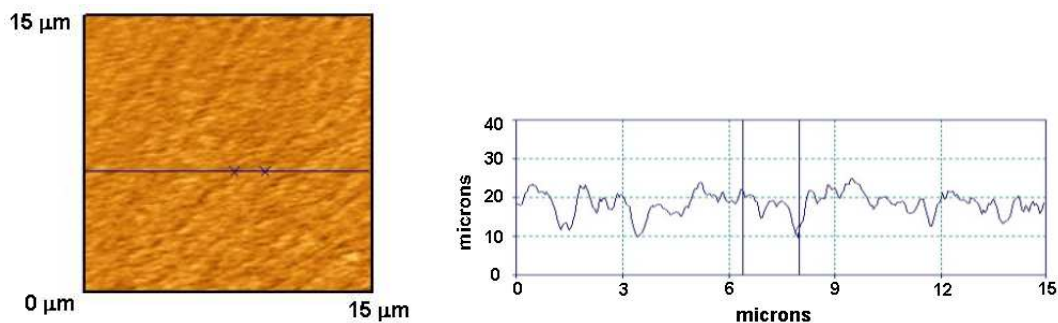


FIG. 4.15 – Image AFM et profil de la surface d'un échantillon LASIM

Pour l'étude de ces échantillons, nous devons donc nous fier aux densités et aux distributions de tailles obtenues sur la figure 4.10.

### 4.3.3 Analyse morphologique après tir sur les inclusions d'or de 400 à 800 nanomètres

Des tirs sur ces échantillons ont été effectués sur le banc d'endommagement laser de l'Institut Fresnel et du CEA/Cesta. L'intérêt des mesures réalisées à l'Institut Fresnel est lié à l'utilisation de petits faisceaux (8 et 12 microns), qui nous a permis de viser avec précision des défauts uniques et d'étudier ainsi leur comportement sous flux à 1064nm et 355nm, en nous affranchissant de tout effet collectif entre particules. Nous comparerons ces résultats à ceux obtenus avec des faisceaux larges (700 microns).

#### Résultats à 1064 et 355nm

Sur la figure 4.16, nous avons représenté les différentes étapes caractéristiques des endommagements observés à 1064nm, pour des défauts enfouis à  $2\mu m$  de profondeur.

Les valeurs de densité d'énergie données dans la figure 4.16 sont représentatives des phénomènes observés, mais ne constituent pas des valeurs absolues. En effet, compte tenu du dépointage et des erreurs de positionnement, l'erreur sur

4.3. ETUDE DE L'INTERACTION LASER AVEC DES NANO-PARTICULES MÉTALLIQUES INCLUSES DANS DE LA SILICE

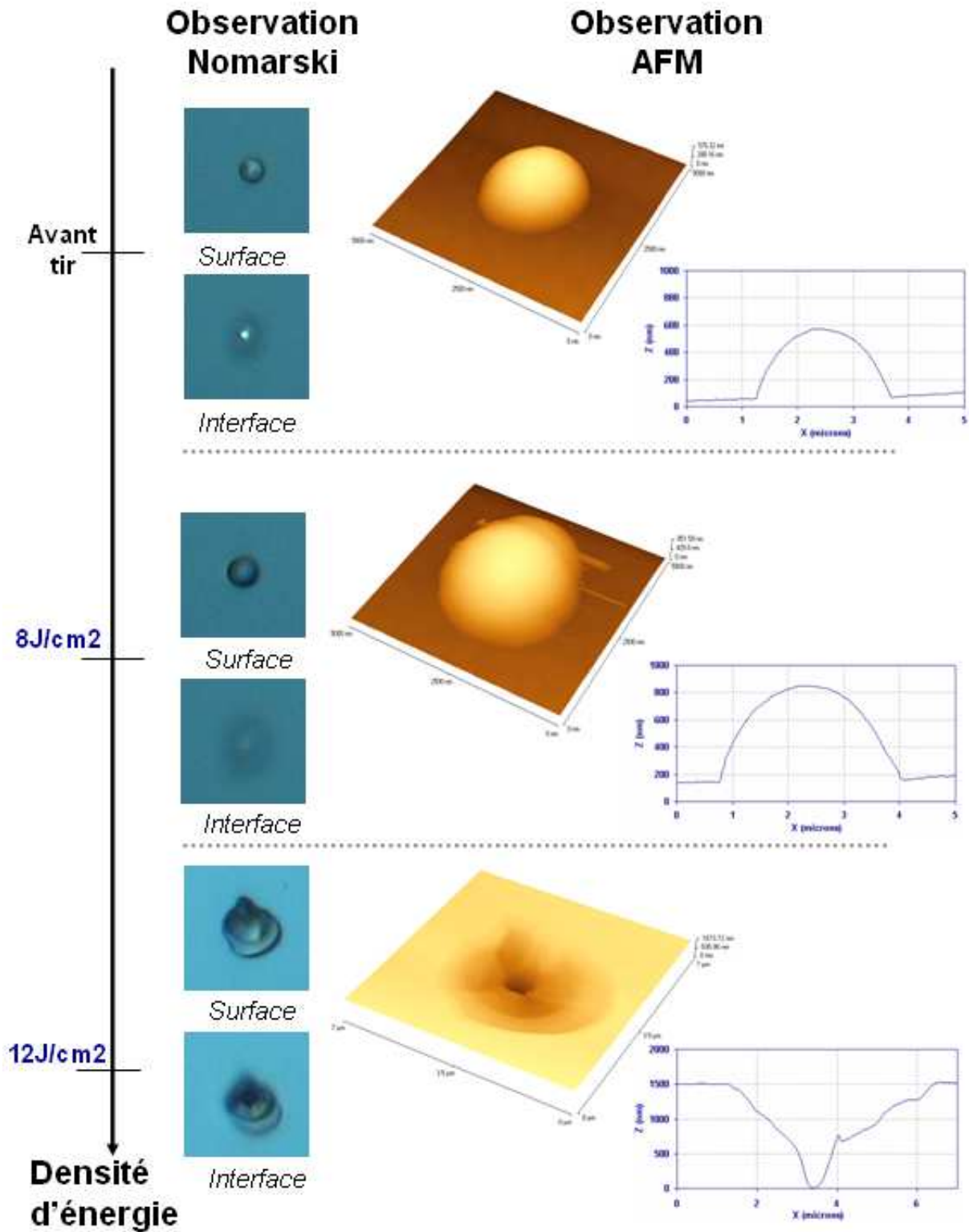


FIG. 4.16 – Différentes étapes caractéristiques des endommagements observés à 1064nm sur une couche d'épaisseur 2 $\mu$ m

la mesure de la densité d'énergie peut être estimée à 10%. Il faut de plus tenir compte du fait que la taille des billes n'est pas constante, ce qui peut également modifier les valeurs de seuil entre deux billes.

Le premier résultat intéressant est que lors de tirs localisés sur des billes à des densités d'énergies supérieures à la dizaine de Joules par centimètre carré, nous observons un cratère à l'endroit où se trouvait la bille visée (voir figure 4.17). Compte tenu des valeurs de seuil de la couche de silice intrinsèque (c'est-à-dire hors des défauts d'or) de l'ordre de  $50 J/cm^2$  à 1064nm, nous pouvons en déduire que le défaut localisé est, comme nous l'avons souhaité pour cette simulation, un précurseur de l'endommagement.

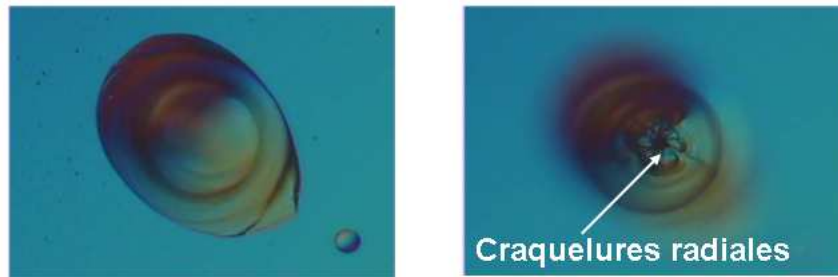


FIG. 4.17 – Morphologie d'endommagement liée à une bille d'or, sur une couche d'épaisseur  $10\mu m$  irradiée à  $5J/cm^2$  à 351 nm. A gauche : mise au point en surface ; à droite : mise au point dans la profondeur de la couche.

Le second résultat majeur est l'apparition d'un "pré-endommagement" : en effet, comme on peut le voir sur la figure 4.16, lors de tirs à environ  $8 J/cm^2$ , la surface de la couche reste intacte alors que la bille d'or n'est plus visible au microscope Nomarski focalisé au niveau de l'interface. L'analyse AFM de la couche ne révèle aucune fracture par laquelle l'or aurait pu s'échapper. Des simulations réalisées par le code Delpor [116] adapté à ces conditions de tir montrent que pour les densités d'énergie mises en jeu, l'or atteint sa phase liquide. Dans ce cas on peut facilement imaginer une migration de l'or dans la matrice de silice, l'or étant en effet connu pour sa forte diffusivité. De plus, l'or reste dans sa phase liquide jusqu'à  $10J/cm^2$  ([116] et tableau 4.1), ce qui exclurait des processus de vaporisation.

En ce qui concerne les comportements à 355nm, les mêmes observations morphologiques ont été effectuées, notamment au niveau de la disparition des billes d'or, et de la morphologie des cratères (figure 4.18). Les mécanismes mis en jeu semblent donc identiques.

Les valeurs de seuil quant à elles diminuent avec la longueur d'onde, conformément à ce qui est observé dans le cas de la silice massive (voir tableau 4.1). Ce

### 4.3. ETUDE DE L'INTERACTION LASER AVEC DES NANO-PARTICULES MÉTALLIQUES INCLUSES DANS DE LA SILICE

---

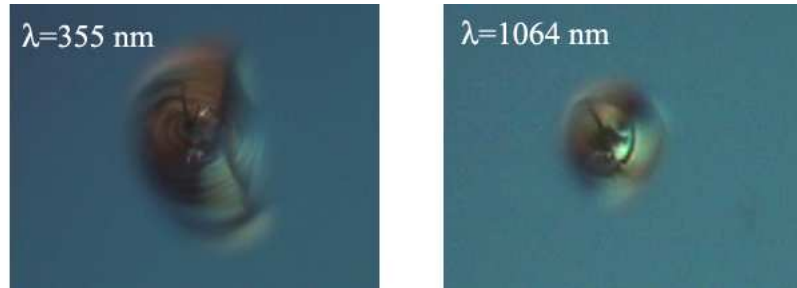


FIG. 4.18 – Comparaison des morphologies d'endommagements observées dans l'UV et l'infrarouge.

très bon accord entre théorie (code Delpor) et expérience représente une avancée significative pour la compréhension de l'initiation à partir d'une particule absorbante.

Longueur d'onde	Seuil couche de silice	Seuil Particule	Fusion théorique	Vaporisation théorique
355 nm	7 $J/cm^2$	0,4-0,8 $J/cm^2$	0,2-0,3 $J/cm^2$	1-1,4 $J/cm^2$
1064 nm	64 $J/cm^2$	8-10 $J/cm^2$	1,5-2 $J/cm^2$	10-11 $J/cm^2$

TAB. 4.1 – Seuil bas d'endommagement de la couche de silice d'épaisseur  $5\mu m$  et des billes enfouies sous la couche. La statistique sur les seuils est effectuée sur 30 sites. La dispersion des seuils des billes peut être attribuée à la dispersion de taille des particules ainsi qu'à l'imprécision de la visée. Les valeurs théoriques sont les prédictions du code Delpor tirées de la référence [117].

#### **Influence de la taille du faisceau sur les valeurs du seuil et de la morphologie**

L'irradiation avec des faisceaux millimétriques effectuées au CESTA amène également aux mêmes observations au niveau de l'évolution de ces endommagements avec l'énergie ( voir figure 4.19 et ref [117]). Cependant, la présence de plusieurs particules sous le spot peut conduire à des effets collectifs. Sur la figure 4.19 par exemple, trois particules ont été irradiées avec la même énergie. Deux cratères se sont formés avec des morphologies différentes sur leur partie supérieure, ce qui laisse penser qu'une interaction a eu lieu entre ces deux billes. De plus une des trois billes n'a pas donné lieu à un endommagement alors que l'énergie était supérieure à son seuil de claquage. Ce comportement peut s'expliquer par une relaxation des contraintes par l'impact voisin. Ces observations montrent l'intérêt de réaliser de manière systématique des comparaisons entre petits et grands faisceau.



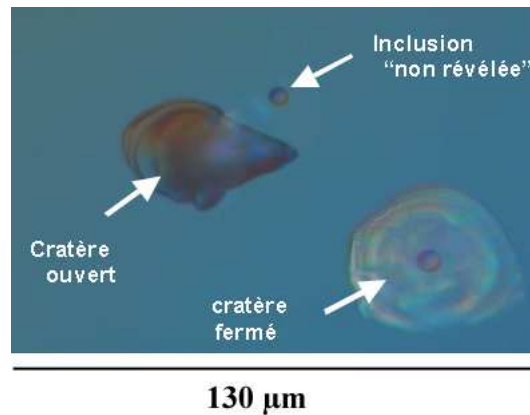


FIG. 4.19 – Image Nomarski d'un endommagement créé par une irradiation avec un faisceau de  $600\mu m$ .

#### Expériences complémentaires de mesures d'absorption

Les résultats ont été complétés par des mesures réalisées grâce à un microscope phothermique couplé à des tirs nanoseconde à  $1064\text{nm}$ . Cette étude réalisée dans le cadre de la thèse d'A. During, a permis une étude quantitative de l'évolution de l'absorption de l'or au cours de tirs localisés sur des défauts. Elle a montré que pour les pré-endommagements observés au Nomarski, l'absorption maximale de l'or décroît lorsque l'énergie du tir augmente alors qu'aucun endommagement de la couche n'est observé. Cette décroissance de l'absorption est associée à un étalement de la zone absorbante. Ceci est conforme à nos observations et renforce l'idée d'une migration de l'or dans le matériau.

#### 4.3.4 Analyse morphologique après tir sur des inclusions d'or de 3 nm

Les tirs effectués avec des petits ou des grands faisceaux, sur des échantillons dont les billes ont des diamètres de  $3\text{nm}$  et une densité de  $10\text{ défauts}/\mu m^2$ , ont pour conséquence de provoquer des délaminations des couches silice. L'endommagement se fait sans passer par des phases permettant d'observer des cratères isolés, comme dans le cas précédent (image AFM d'un endommagement figure 4.20). Les mesures ont montré que la densité d'énergie seuil de cet écaillage en surface est de  $4\text{J}/\text{cm}^2$  à  $355\text{nm}$  pour l'échantillon de densité  $10/\mu m^2$  et inférieure à  $4\text{J}/\text{cm}^2$  pour l'échantillon de densité  $100/\mu m^2$ . Ces résultats révèlent de manière satisfaisante, que le seuil d'endommagement diminue lorsque la densité des inclusions augmente.

Les morphologies observées suggèrent que les effets collectifs sont importants, du fait des densités élevées de particules ( $10$  particules par micromètre carré pour la

### 4.3. ETUDE DE L'INTERACTION LASER AVEC DES NANO-PARTICULES MÉTALLIQUES INCLUSES DANS DE LA SILICE

moins élevée). À titre de comparaison, une expérience réalisée à Rochester a montré que des nanoparticules d'or de 5 nm de diamètre très espacées et recouvertes d'une couche de silice de 60 nm génèrent des cratères de taille supérieure à 100 nm [114]. Dans le cas de nos cibles où les agrégats d'or séparés de 300 nm sont recouverts de 130 nm de silice, il n'est donc pas étonnant que des effets collectifs conduisent à une délamination totale de la zone irradiée. Pour s'affranchir de ce problème, il est prévu de réaliser des échantillons pour lesquels la densité d'agrégats ne dépasse pas une particule par micromètre carré.

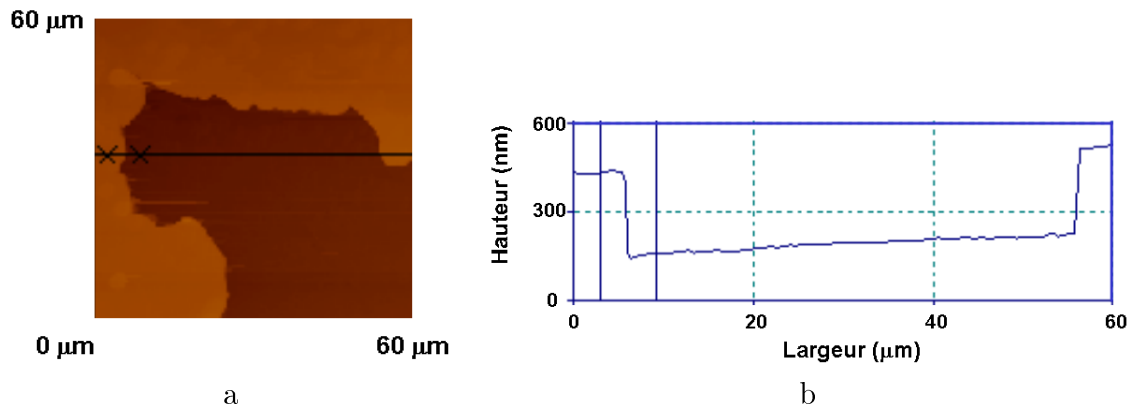


FIG. 4.20 – Observation AFM d'un endommagement à la surface d'un échantillon LASIM de densité 100 défauts par micromètre carré

Néanmoins des expériences de spectrométrie de masse par temps de vol couplée à des tirs sur ces échantillons, effectuées à l'Université de Rochester, ont permis de mettre en évidence une phase de "pré-endommagement" à faible énergie, qui n'est pas détectable par des moyens optiques classiques, ni par AFM [112]. Ce "pré-endommagement" se manifeste par une émission de particules d'or, sans modification visible de la surface par des observations a posteriori. Ces résultats indiqueraient qu'une migration de l'or a eu lieu dans la matière jusqu'à la surface. Ce résultat, comme dans le cas précédent, est en accord avec les simulations montrant que pour ces énergies de tirs, l'or est porté à son point de fusion [112] et peut donc migrer dans le matériau.

#### 4.3.5 Bilan de l'étude

L'initiation de l'endommagement de la silice par des inclusions métalliques à 1064nm et à 355nm a été clairement démontrée, grâce à des irradiations localisées couplées à une analyse fine par microscopie à force atomique et Nomarski. Dans le cas de particules de quelques centaines de nanomètres, l'étude morphologique sur des zones irradiées apparemment non endommagées a également permis de révéler l'existence de pré-endommagements qui correspondent à une diffusion

de l'or dans le matériau environnant. L'existence de ces pré-endommagements a également été détectée dans le cas de particules nanométriques. Ajoutons que les résultats sur ces mêmes échantillons obtenus par photothermie in-situ permettent également de valider le modèle thermique [116] mettant en jeu la fusion et la migration de l'or, pour des énergies inférieures à celles requises pour provoquer un cratère.

En ce qui concerne la comparaison 355 nm/1064 nm, outre la variation attendue du seuil d'endommagement liée à la variation d'absorption, nous n'observons pas de modification de la morphologie des "pré-endommagements" et des endommagements. Les mécanismes mis en jeu à ces deux longueurs d'onde semblent donc identiques, conformément à ce qui a été observé sur la silice massive.

Enfin, la comparaison des endommagements avec un petit et un grand faisceau a permis de mettre en évidence l'existence d'effets collectifs. Ces effets collectifs avaient en effet déjà été évoqués [34] sans confirmation expérimentale.

## 4.4 Croissance des endommagements

Pour l'utilisation des composants optiques, il s'avère intéressant d'observer la croissance de l'endommagement lors de tirs successifs, notamment pour en déduire des lois de croissance qui permettront d'estimer la durée de vie "fonctionnelle" des optiques soumises à des tirs répétés. Dans ce sens différentes expériences ont été menées, afin d'estimer ces lois de croissance sous flux [118, 119], en utilisant des faisceaux millimétriques à centimétriques.

Notre objectif dans cette partie ne va pas être d'estimer des lois de croissance, mais plutôt d'analyser les morphologies observées lors de la croissance des endommagements, pour en tirer des informations sur les processus impliqués. Sans constituer une étude extensive de la croissance des dommages, cette étude a pour ambition de montrer à travers un exemple, le potentiel du dispositif pour mener ce type d'étude.

### 4.4.1 Croissance lors de tirs répétés sur la surface

Rappelons ici que le dispositif automatique mis en place et présenté chapitre 2, s'adapte parfaitement à l'étude de la croissance des endommagements grâce à la visualisation en temps réel et à l'enregistrement des images associées à chaque tir. Nous présentons dans cette partie une étude de croissance menée sur la surface d'un verre de BK7, en utilisant un faisceau focalisé sur une vingtaine de microns.

Les tirs successifs effectués sur cet échantillon font croître l'endommagement, comme le montre la figure 4.21. L'endommagement final après un millier de tirs est représenté figure 4.22.

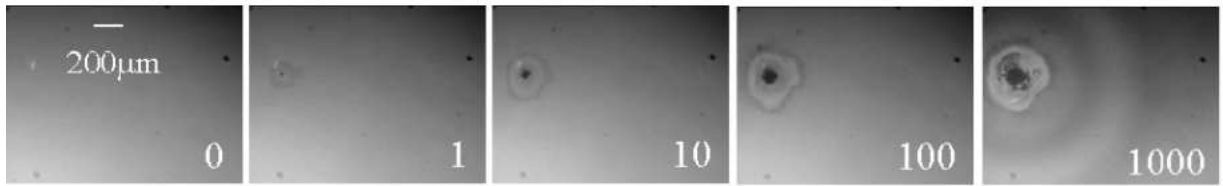


FIG. 4.21 – Images de la surface d'un verre de BK7 après 1, 10, 100, 1000 tirs répétés sur le même site à énergie constante

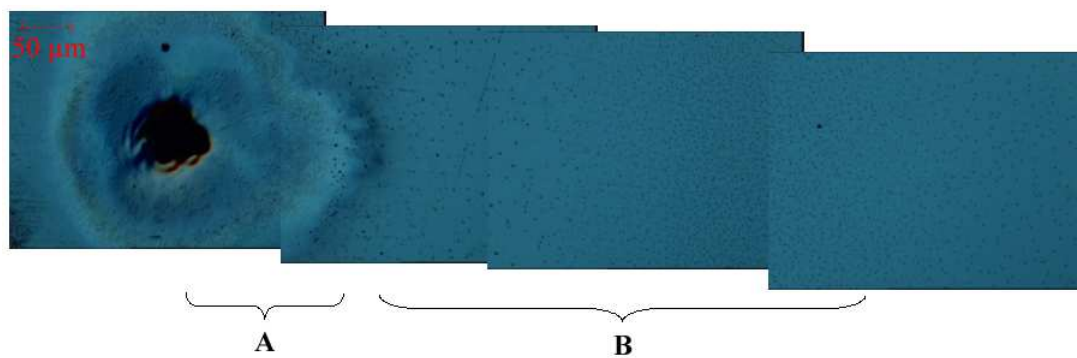


FIG. 4.22 – Image Nomarski de l'endommagement final 4.21

Des mesures par microscopie à force atomique nous ont permis de montrer que les anneaux observés dans la zone B de la figure 4.22 sont des amas de particules correspondant à des retombées de matière. Nous voyons donc que lors d'un endommagement en tirs répétés, la surface voisine peut être contaminée à plusieurs millimètres de distance.

La zone A correspond à la région où la matière a été modifiée. D'après ces observations, la taille finale de l'endommagement (zone A) est plusieurs dizaines de fois plus grande que la taille du faisceau. L'observation des zones périphériques de l'endommagement par l'utilisation conjointe du microscope Nomarski et à force atomique nous a permis de mettre en évidence un changement d'indice du matériau. En effet, il apparaît une variation de contraste au Nomarski alors qu'un profil plat est obtenu à l'AFM. Ce changement d'indice peut être interprété comme une densification de la silice, ce qui est en accord avec de récentes observations et modélisations [120] qui ont mis en évidence des densifications de l'ordre de 20% dans la silice autour d'endommagements. Cette modification de la matière peut trouver son origine dans un effet de propagation de l'onde de choc ou/et par une brûlure du plasma se formant pendant l'endommagement [120].

#### 4.4.2 Révélation de rayures

L'analyse des images précédentes a également permis de mettre en évidence l'apparition, à la périphérie de la zone endommagée, de rayures (figure 4.23) qui étaient invisibles avant tir.

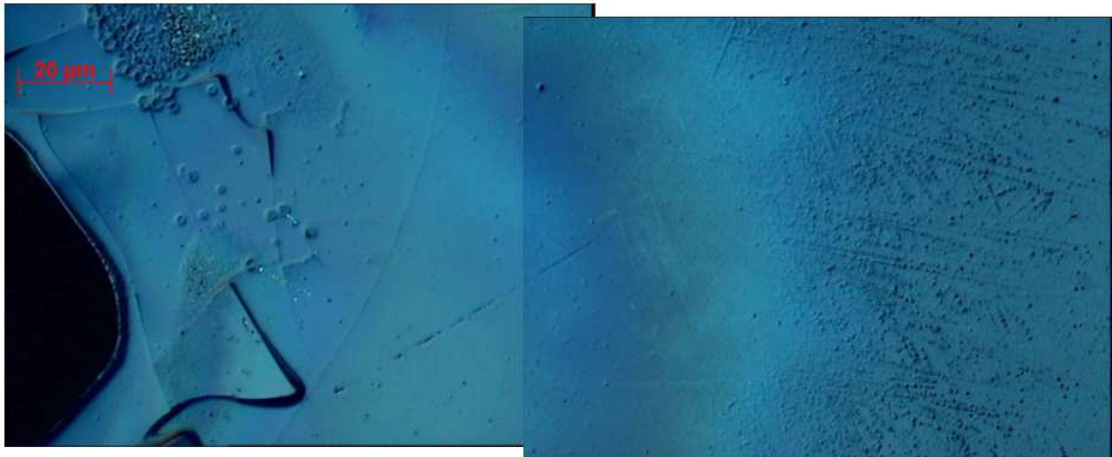


FIG. 4.23 – Image Nomarski d'un endommagement après 500 tirs répétés

L'analyse AFM de ces zones (figure 4.24), montre que ces rayures sont en fait des rangées de particules de taille sub-micronique.

Il est fort probable, que ces défauts aient été présents avant les tirs, et soient révélés par l'effet de l'endommagement. Après discussion avec des polisseurs, l'hypothèse la plus plausible est que ces particules proviennent du processus de polissage des verres. Les verres passent en effet par des étapes introduisant des résidus de polissage. Ces résidus pourraient être masqués par des étapes ultérieures, et révélés dans notre cas par une ablation de la surface.

Le même phénomène peut également être observé sur la face arrière d'un verre, dans ce cas les "rayures" apparaissent également en dehors de la zone irradiée (figure 4.25). Rappelons pour la cohérence de nos conclusions que les verres testés sont polis sur les deux faces.

#### 4.4.3 Bilan

L'étude de la croissance d'endommagements sur la face avant nous a permis de montrer que l'endommagement se propageait bien au-delà du faisceau : d'une part nous avons montré que des retombées de matière pouvaient être observées à plus d'un millimètre de l'impact ; d'autre part nous avons mis en évidence des modifications de la matière, de type densification, sur une centaine de microns qui pourraient être dues à la propagation de l'onde de choc ou au plasma.

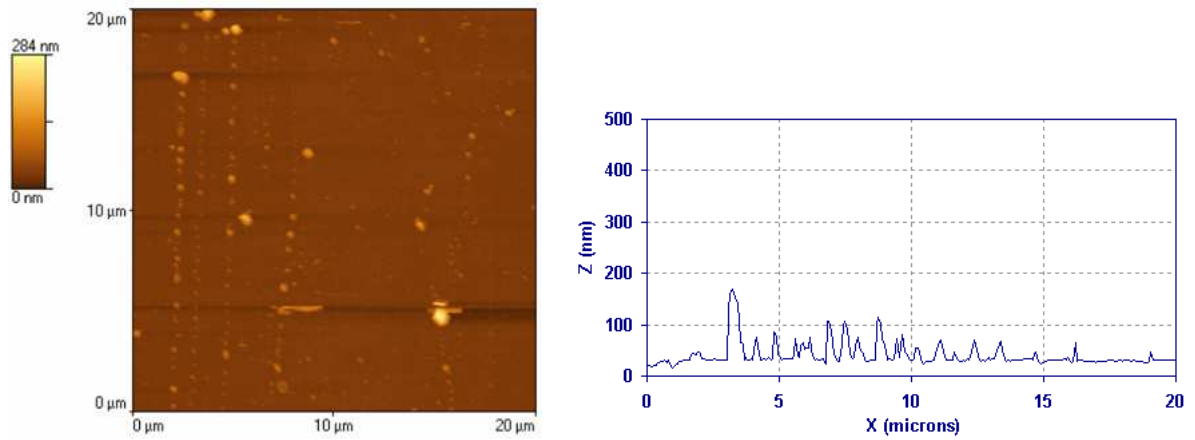


FIG. 4.24 – Image AFM et profil des rayures apparaissant en périphérie des endommagements

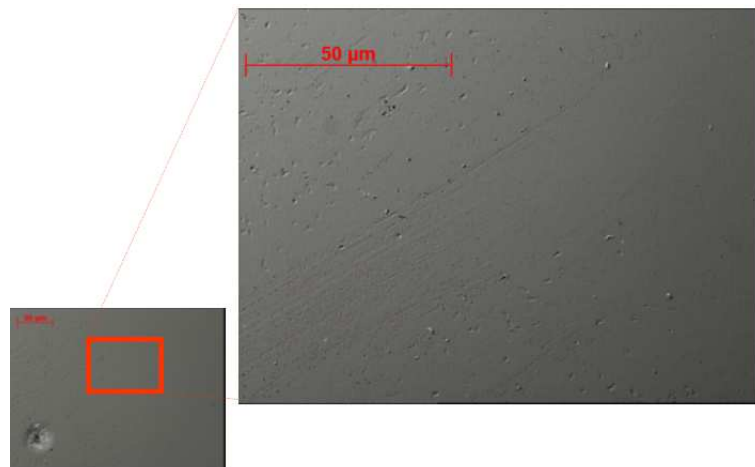


FIG. 4.25 – Mise en évidence de la révélation de rayures près d'un endommagement face arrière

La révélation après endommagement de défauts de surface "invisibles" avant tir à également été observée, ces défauts étant à priori liés aux processus de polissage utilisés sur l'échantillon.

## 4.5 Conclusion

Nous avons mené une étude morphologique des endommagements dans la silice, grâce à l'utilisation d'outils de mesure performants associés au banc de tenue au flux que nous avons développé.

Nous avons notamment pu mettre en évidence différents points associés aux processus d'endommagement en surface des verres (silice et BK7) :

- la reproduction de la forme du faisceau en face avant indique que l'énergie entière du faisceau participe au processus d'endommagement. La vaporisation de la silice observée dans ce cas ferait intervenir des processus d'échauffement liés à l'absorption de l'énergie par le plasma ou par la silice dont les propriétés d'absorption seraient modifiées. Ces mécanismes expliqueraient également les morphologies d'endommagement observés dans le volume.
- de par la profondeur des cratères observés à l'AFM les défauts initiateurs en surface seraient confinés à moins de 100nm de la surface. La densité de défaut peut alors être estimée à 1 défaut/ $\mu m^3$ , d'après les courbes de seuil obtenues au chapitre 3.
- dans le cas de la face arrière, un effet de pression provoque une éjection de matière induisant un endommagement différent de la face avant. Le confinement du plasma dans le matériau pourrait être à l'origine de ce phénomène.
- la surface de la silice est modifiée en dehors de l'impact du faisceau laser (brûlures, densification, retombées de matière), de par l'action du plasma et de l'onde de choc. Ces modifications pourraient être le siège de l'amorçage d'endommagement si le tir suivant n'est pas assez éloigné.
- l'endommagement peut s'initier sur des rayures à la surface du verre, des rayures "invisibles" pouvant également se trouver sous la surface du verre.
- l'ensemble des effets sont observés indifféremment à 1064nm et 355nm, ce qui suggère des mécanismes identiques.

D'autre part, l'étude morphologique d'une couche de silice de  $SiO_2$  par AFM a permis de révéler la présence de défauts initiateurs de l'endommagement dans la silice en couche mince. Les densités de défauts estimées grâce à ces images sont en accord avec celles estimées par l'ajustement des courbes de seuil tracées sur ce matériau. Ce résultat peut être considéré comme majeur car il met en cohérence l'étude morphologique avec les résultats obtenus par le tracé de courbes de seuil.

L'étude menée sur des échantillons de silice contaminés artificiellement par des particules d'or, nous a permis de montrer que des inclusions métalliques nanométriques se comportent comme des sites initiateurs de l'endommagement. Dans le cas de particules de quelques centaines de nanomètres, l'étude morphologique sur des zones irradiées apparemment non endommagées a permis de révéler l'existence de pré-endommagements qui correspondent à une diffusion de l'or dans le matériau environnant. L'existence de ces pré-endommagements a également été détectée dans le cas de particules nanométriques [112]. L'ensemble des résultats est en accord avec la prédiction théorique du modèle Delpor ([116]) qui propose un mécanisme d'initiation d'endommagement. De plus les résultats obtenus par photothermie in-situ [121] valident de manière quantitative cette étude.

En ce qui concerne la comparaison 355 nm/1064 nm, outre la variation attendue du seuil d'endommagement, nous n'observons pas de modification de la

morphologie des "pré-endommagements" et des endommagements de type cratère. Les mécanismes mis en jeu à ces deux longueurs d'onde semblent donc identiques.

Grâce à ces premiers résultats encourageants, de nouveaux échantillons sont en cours de fabrication, afin d'obtenir des matériaux se rapprochant plus des conditions réelles. Il s'agit notamment de diminuer les problèmes de pollution, et de réaliser un meilleur contrôle de la taille et de la densité des particules.



*CHAPITRE 4. ETUDE DES SITES PRECURSEURS PAR UNE ANALYSE  
MORPHOLOGIQUE DES ENDOMMAGEMENTS*

---

## Chapitre 5

# TECHNIQUES NON-DESTRUCTIVES APPLIQUEES A LA DETECTION DES SITES PRECURSEURS DE L'ENDOMMAGEMENT LASER

Jusqu'ici nous avons été capables de détecter et quantifier les défauts précurseurs de l'endommagement laser, grâce à une analyse des courbes de seuil. Il s'agit donc d'une méthode optique destructive, qui pour l'instant constitue un outil unique d'investigation.

L'investigation et la mise en œuvre de méthodes non destructives pour une étude similaire apparaît ainsi comme un objectif majeur pour les années à venir. En particulier ces méthodes permettraient, grâce à une étude temps réel systématique et répétée sur un même échantillon, de rétro-agir sur les processus de fabrication.

C'est pourquoi nous menons ici une étude théorique sur la possibilité de détecter de façon non-destructive des défauts absorbants nanométriques par des outils photothermiques.

Pour cela, en comparant la puissance absorbée par ces particules à la détectivité des méthodes photothermiques, nous trouvons des conditions sur leur taille et leur coefficient d'extinction pour pouvoir les détecter. Un calcul thermique effectué dans le cas du régime nanoseconde, nous permet également de trouver des conditions sur la taille et le coefficient d'extinction des défauts, pour pouvoir initier un endommagement.

## 5.1 Introduction

Nous avons mis en évidence précédemment la présence de défauts précurseurs de l'endommagement dans les verres, et étudié les mécanismes par des analyses morphologiques. Cependant, ces investigations sont évidemment destructives, et il ne sera pas utile ici de rappeler tout l'intérêt d'inventer et de mettre en oeuvre des méthodes de détection non destructives. Nous allons donc dans ce chapitre essayer de quantifier la détectivité nécessaire et les outils de mesure à mettre en oeuvre pour pouvoir détecter des nano-défauts dans la silice.

La première difficulté pour mettre en oeuvre ces méthodes non destructives est liée à la densité remarquablement faible des défauts recherchés, de l'ordre de quelques individus dans un cube de  $100 \mu m$  de côté dans le cas des substrats (voir partie 3). Compte tenu de la taille pressentie pour ces sites (1 nm ou  $1 \mu m$  de rayon par exemple), on comprend pourquoi l'utilisation des techniques à sonde locale [122] ou champ proche [123] n'a pas donné de résultats probants à ce jour. Mais au delà du problème de localisation, vient se superposer le problème de la détectivité proprement dite des défauts.

Dans un premier temps, nous évaluerons l'absorption des sites précurseurs, puis les élévations de température en régime transitoire nanoseconde au voisinage d'un défaut absorbant. Ces simulations nous permettront de trouver des conditions sur la taille limite des défauts absorbants pouvant initier un endommagement. Puis moyennant certaines conditions sur la taille et l'indice complexe des particules et les puissances optiques mises en jeu, nous discuterons de la résolution du problème de détectivité, et de l'application aux techniques de mesure photothermiques .

## 5.2 Calcul de la puissance absorbée par les sites précurseurs en fonction de la puissance incidente

Tout d'abord nous cherchons ici à calculer la puissance absorbée par un site précurseur en fonction de la puissance incidente. On exprimera donc l'absorption d'un défaut isolé en fonction de la taille et de la partie imaginaire de l'indice ; pour cela nous ne ferons pas appel à des théories complexes, car seul l'ordre de grandeur nous intéresse.

Considérons quelques nanocentres dans un substrat transparent de type verre amorphe par exemple. La densité volumique de puissance absorbée dans le défaut est donnée par la formule classique :

$$\frac{dA}{dv} = \frac{\omega}{2} (\varepsilon'' E^2 + \mu'' H^2) \quad (5.1)$$

5.2. CALCUL DE LA PUISSANCE ABSORBÉE PAR LES SITES  
PRÉCURSEURS EN FONCTION DE LA PUISSANCE INCIDENTE

---

où  $dv$  est un élément de volume,  $\varepsilon''$  et  $\mu''$  sont les parties imaginaires de la permittivité et de la perméabilité du défaut, et  $(E, H)$  le champ électromagnétique. On supposera ici que les milieux ne sont pas magnétiques, de sorte que l'on a :

$$\frac{dA}{dv} = \frac{\omega}{2} \varepsilon'' E^2 \quad (5.2)$$

On en déduit que l'absorption dans un défaut isolé s'écrit comme :

$$\Delta A \approx \frac{\omega}{2} \varepsilon'' \int_{\Delta v} E^2 dv \quad (5.3)$$

où  $\Delta v$  désigne le volume de la particule.

Si l'on définit maintenant le champ moyen dans la particule comme :

$$E_m^2 = \frac{1}{\Delta v} \int_{\Delta v} E^2 dv \quad (5.4)$$

nous obtenons l'absorption moyenne de la particule :

$$\Delta A = \frac{\omega}{2} \varepsilon'' E_m^2 \Delta v \quad (5.5)$$

Il nous reste maintenant à écrire le champ  $E_m^2$  en fonction de la puissance mise en jeu dans l'expérience.

Ecrivons tout d'abord le faisceau incident sous la forme d'un paquet d'ondes :

$$E^+(r, z) = \int_{\sigma} A^+(\sigma) \exp[j(\sigma r + \alpha(\sigma)z)] d\sigma \quad (5.6)$$

où  $A$  désigne la Transformée de Fourier du champ,  $\sigma$  la pulsation spatiale bi-dimensionnelle,  $\alpha(\sigma) = \sqrt{k^2 - \sigma^2}$ , avec  $k = \frac{2\pi n}{\lambda}$ , et  $\lambda$  la longueur d'onde incidente. Le flux de Poynting transporté par ce faisceau est donné par :

$$\Phi = \frac{4\pi^2}{2\omega\mu} \int_{\sigma} \alpha(\sigma) |A^+(\sigma)|^2 d\sigma \quad (5.7)$$

Pour un faisceau de faible divergence, on obtient, en quittant le plan de Fourier :

$$\Phi = \frac{\alpha}{2\omega\mu} \int_r |E^+(r)|^2 dr \quad (5.8)$$

La densité surfacique de puissance s'exprime alors de la façon suivante dans le cas d'un faisceau de faible divergence :

$$\frac{d\Phi}{d\Sigma} = \frac{\alpha}{2\omega\mu} |E^+(r)|^2 \quad (5.9)$$

Définissons maintenant un facteur moyen prenant en compte les effets d'interférence et de résonance dans le défaut :

$$\beta = \frac{|E_m|^2}{|E^+|^2} \quad (5.10)$$

On obtient ainsi :

$$\frac{d\Phi}{d\Sigma} = \frac{\alpha}{2\omega\mu} \frac{|E_m|^2}{\beta} \quad (5.11)$$

et finalement :

$$\Delta A \approx \left( \frac{\omega^2 \varepsilon'' \mu}{\alpha} \right) \beta \Delta v \left( \frac{d\Phi}{d\Sigma} \right) \quad (5.12)$$

soit encore :

$$\Delta A \approx 4\pi \left( \frac{n' n''}{n_g} \right) \beta \left( \frac{\Delta v}{\lambda} \right) \left( \frac{d\Phi}{d\Sigma} \right) \quad (5.13)$$

Cette dernière expression nous permet de calculer la puissance absorbée par un défaut de volume  $\Delta v$  et d'indice complexe  $n=n'+jn''$ , sous une densité de puissance incidente par unité de surface  $\frac{d\Phi}{d\Sigma}$  donnée. L'indice  $n_g$  désigne l'indice du verre.

### 5.3 Application à la faisabilité d'une détection par les méthodes photothermiques

On se demande ici si l'absorption d'un site précurseur est assez grande pour rendre celui-ci détectable.

#### 5.3.1 Ordres de grandeur des puissances absorbées

Considérons ainsi, dans le but d'obtenir un ordre de grandeur de la puissance absorbée, deux cas classiques où l'on focalise quelques 100 mW d'un laser Argon dans une surface de  $1mm^2$  ou de  $1\mu m^2$ , ce qui correspond à des densités d'énergie respectives de  $10^5 W/m^2$  et de  $10^{11} W/m^2$ . On obtient alors, pour  $n' \approx n_g$  :

$$\Delta A \approx (n'' \beta \Delta v) 2.10^{12} W \quad \text{pour } 10^5 W/m^2 \quad (5.14)$$

$$\Delta A \approx (n'' \beta \Delta v) 2.10^{18} W \quad \text{pour } 10^{11} W/m^2 \quad (5.15)$$

Dans le tableau 5.1 nous donnons les puissances absorbées calculées pour deux tailles de spot laser incident et différentes tailles de particules, avec une valeur unitaire pour  $n'' \beta$ . Les valeurs effectives de puissance absorbée sont donc obtenues en utilisant les valeurs du tableau 5.1 pondérées par la valeur de l'indice imaginaire du défaut.

Nous voyons donc qu'avec un spot de rayon micrométrique (densité de puissance  $100mW/\mu m^2$ ), les absorptions des particules métalliques restent importantes. Dans le cas d'un défaut nanométrique, la limite de détectivité est atteinte comme nous allons le voir par la suite. Par contre, pour des indices imaginaires inférieurs à  $10^{-5}$ , les puissances absorbées dans un défaut nanométrique sont inférieures à  $10^{-13}$  W pour, ce qui les rend indétectables.

### 5.3. APPLICATION À LA FAISABILITÉ D'UNE DÉTECTION PAR LES MÉTHODES PHOTOTHERMIQUES

---

Rayon	$1\mu m$	100nm	10nm	1nm
$100mW/mm^2$	$8.10^{-6}W$	$8.10^{-9}W$	$8.10^{-12}W$	$8.10^{-15}W$
$100mW/\mu m^2$	8W	$8.10^{-3}W$	$8.10^{-6}W$	$8.10^{-9}W$

TAB. 5.1 – Puissances absorbées par des particules de rayon variant entre le micromètre et le nanomètre, pour 2 densités de puissance incidente (valeur unitaire de  $n''\beta$ ).

#### 5.3.2 Défectivité des techniques photothermiques

Les ordres de grandeur des puissances absorbées obtenus doivent être comparés aux niveaux de défectivité des méthodes utilisées. Les techniques de déflexion photothermique n'ont pas toutes la même défectivité : les techniques implémentées en configuration réflexion ou transmission notamment voient leur sensibilité croître lorsque le faisceau pompe est focalisé. Un ordre de grandeur raisonnable de la plus petite absorption normalisée détectable par ces techniques est de  $10^{-8}$  [121] en ce qui concerne les absorptions localisées.

#### 5.3.3 Application à la détection de nano-défauts

Supposons maintenant que les nano-défauts soient de nature métallique, de sorte que l'indice imaginaire est de l'ordre de l'unité ( $n'' \approx 1$ ), et négligeons l'amplification du champ au voisinage du défaut ( $\beta \approx 1$ ). Si l'on prend en compte le fait que les méthodes photothermiques permettent de déceler des absorptions allant jusqu'à  $10^{-8}$  du flux incident, ces données nous permettent alors d'évaluer la défectivité des nano-défauts par ces méthodes, en fonction de leur rayon. Ainsi pour une densité de puissance de  $100mW/mm^2$ , seules les particules microscopiques sont détectables. Par contre, avec une densité de  $100mW/\mu m^2$ , on peut espérer détecter des particules d'une dizaine de nanomètres de façon individuelle.

Jusqu'ici nous avons supposé que les particules étaient métalliques, mais il est tout aussi possible qu'elles soient de nature diélectrique. Dans ce cas les valeurs obtenues dans le tableau 5.1 sont à pondérer par l'indice imaginaire du diélectrique. Avec un faisceau incident focalisé sur des dimensions micrométriques, des particules d'indice imaginaire  $10^{-3}$  et de rayon 10 nm devraient pouvoir être détectées à condition que de tels éclaircissements énergétiques ( $10^{11}W/m^2$ ) ne conduisent pas à un endommagement de type thermique.

Nous pouvons ici aller plus loin car les mesures obtenues par microscopie photothermique au laboratoire indiquent des niveaux d'absorption normalisés de quelques  $10^{-4}$  pour des composants optiques interférentiels, en utilisant un faisceau de 100 mW focalisé sur une centaine de microns [124, 121]. Faisons l'hypo-

thèse que ces absorptions soient celles des sites précurseurs de l'endommagement ; compte tenu des densités mesurées pour ces sites via notre banc de métrologie, sur les couches de silice (voir chapitre 3) nous en déduisons que l'absorption d'une particule est de l'ordre de  $10^{-6}$ .

Pour une densité d'énergie de  $10^{11}W/m^2$ , on obtiendrait alors :

$$\Delta A \approx (n''\beta\Delta v)2.10^{18}W/m^3 \Rightarrow n''\beta\Delta v = 5.10^{-25} \quad (5.16)$$

Si on néglige la sur-intensité dans la particule, ce qui est justifié pour ces cas de faible diamètre ou choc d'indice, on obtient ainsi le diamètre ou le volume de la particule en fonction de son indice imaginaire :

$$\Delta v = \left( \frac{5.10^{-25}}{n''} \right) m^3 \quad (5.17)$$

Dans le tableau 5.2 nous donnons les diamètres de défauts obtenus en conséquence.

$n''$	$10^{-6}$	$10^{-4}$	$10^{-2}$	1
R	500nm	100 nm	25 nm	5 nm

TAB. 5.2 – Diamètres de particules en fonction de l'indice imaginaire (voir texte).

Nous avons donc une obtenu une estimation de la taille des défauts dans une couche mince, en fonction de leur indice imaginaire. Ce résultat nous paraît majeur dans la mesure où nous n'avons pas trouvé jusqu'ici d'évaluation objective de la taille des sites précurseurs. Le tableau 5.2 montre que si les sites sont métalliques, alors le diamètre est proche de 5nm.

## 5.4 Calcul de température en régime nanoseconde

Nous présentons maintenant un calcul thermique permettant de quantifier les variations de température lors de l'irradiation d'un défaut absorbant (une inclusion métallique par exemple) inclus dans un milieu homogène non absorbant (comme de la silice). Pour cela nous étudierons le cas d'une "boule" source, en quantifiant les élévations de température atteintes lors d'une impulsion temporelle, et en appliquant ces calculs au cas nanoseconde.

### 5.4.1 Calcul dans le cas d'une "boule" source

Considérons le cas d'un défaut absorbant de rayon R dans un milieu homogène, éclairé par une onde plane ayant un profil temporel Gaussien, de largeur à  $1/e$  :  $\tau$  (figure 5.1).

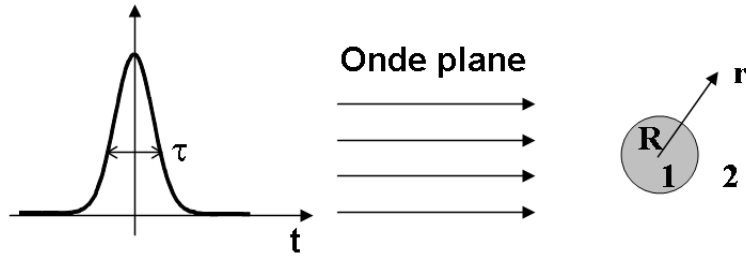


FIG. 5.1 – Cas d’une boule source de rayon  $R$  (milieu 1), dans un milieu homogène non absorbant (milieu 2), éclairé par une onde plane de profil temporel Gaussien.

L’élévation de température ne dépend que de  $\rho$  et de  $t$ , et est solution, en première approximation, de l’équation de la chaleur :

$$\Delta T(\rho, t) - \frac{1}{a} \frac{\partial T(\rho, t)}{\partial t} = -\frac{S(\rho, t)}{b} \quad (5.18)$$

où  $a$  et  $b$  sont respectivement la diffusivité thermique (en  $m^2s^{-1}$ ) et la conductivité thermique (en  $Wm^{-1}K^{-1}$ ) des milieux considérés.  $S(\rho, t)$  est le terme source.

Nous supposons la source de chaleur constante dans la boule ( $S_0$ ), hypothèse qui se justifie par le faible rayon du défaut considéré. L’équation de la chaleur s’écrit donc dans les différents milieux :

$$\rho < R : \Delta T_1(\rho, t) - \frac{1}{a_1} \frac{\partial T_1(\rho, t)}{\partial t} = -\frac{S_0}{b_1} \exp\left(-\frac{t^2}{\tau^2}\right) \quad (5.19)$$

$$\rho > R : \Delta T_2(\rho, t) - \frac{1}{a_2} \frac{\partial T_2(\rho, t)}{\partial t} = 0 \quad (5.20)$$

Avec les conditions aux limites :

$$T_1(0, t) = \text{valeur finie} \quad (5.21)$$

$$T_2(+\infty, t) = 0 \quad (5.22)$$

Et les conditions à l’interface :

$$T_1(R, t) = T_2(R, t) \quad (5.23)$$

$$b_1 \left. \frac{\partial T_1}{\partial \rho} \right|_R = b_2 \left. \frac{\partial T_2}{\partial \rho} \right|_R \quad (5.24)$$

Pour résoudre l’équation de la chaleur, considérons la transformation de Fourier par rapport à la variable temporelle :

$$T(\rho, t) \xrightarrow{T.F.} \hat{T}(\rho, \Omega) \quad (5.25)$$



L'équation de la chaleur devient alors, après transformation de Fourier :

$$\Delta \widehat{T}_1(\rho, \Omega) + \alpha_1^2 \widehat{T}_1 = -\frac{S_0}{b_1} \sqrt{\pi\tau} \exp(-\pi^2 \tau^2 \Omega^2) \quad (5.26)$$

$$\Delta \widehat{T}_2(\rho, \Omega) + \alpha_2^2 \widehat{T}_2 = 0 \quad (5.27)$$

avec  $\alpha_i = \sqrt{\frac{2\pi\Omega}{2a_i}}(1+j)$

En utilisant les conditions à l'origine et à l'infini, les solutions dans les différents milieux peuvent s'écrire de la façon suivante :

$$\widehat{T}_1(\rho, \Omega) = \frac{A_1}{\rho} \exp(j\alpha_1 \rho) - \frac{A_1}{\rho} \exp(-j\alpha_1 \rho) - \frac{S_0}{\alpha_1^2 b_1} \sqrt{\pi\tau} \exp(-\pi^2 \tau^2 \Omega^2) \quad (5.28)$$

$$\widehat{T}_2(\rho, \Omega) = \frac{A_2}{\rho} \exp(j\alpha_2 \rho) \quad (5.29)$$

Les constantes  $A_1$ , et  $A_2$  se trouvent en utilisant les conditions à l'interface. Cette résolution, effectuée numériquement, nous permet d'accéder à  $\widehat{T}_i(\rho, \Omega)$ . La température  $T_i(\rho, t)$  est ensuite obtenue par transformée de Fourier inverse numérique :

$$T_i(\rho, t) = \Re \left( \widehat{T}_i(\rho, \Omega) \exp(-j2\pi\Omega t) d\Omega \right) \quad (5.30)$$

### 5.4.2 Application au régime nanoseconde

Nous allons maintenant appliquer ces calculs au cas d'une inclusion dans un verre, soumise à une impulsion nanoseconde.

Conformément au calcul effectué précédemment, le terme source s'exprime de la façon suivante :

$$\frac{\Delta A}{\Delta v} = 4\pi \left( \frac{n'n''}{n_g} \right) \left( \frac{\beta}{\lambda} \right) \left( \frac{d\Phi}{d\Sigma} \right) \quad (5.31)$$

Considérons une impulsion de  $10J/cm^2$  à  $1064nm$  d'une durée de  $10ns$ , en utilisant tout d'abord une valeur unitaire pour  $n''\beta$ , et une valeur de  $n'$  proche de l'indice du verre. Le terme source vaut alors  $1,3 \cdot 10^{20} W/m^3$ .

Nous pouvons alors calculer la répartition de la température dans le milieu pour différentes tailles de particules. Les paramètres thermiques utilisés sont ceux d'un métal ( $a = 2,5 \cdot 10^{-5} m^2 s^{-1}$  et  $b = 90 W m^{-1} K^{-1}$ ). Les valeurs effectives obtenues devront alors être pondérées par ces différents coefficients.

Les variations de température à l'interface défaut/silice sont représentées sur la figure 5.2. Les évolutions de température sont représentées de façon normalisée pour pouvoir les comparer. Les températures maximales atteintes pour différentes tailles de défauts sont calculées sur la figure 5.3.

Les valeurs trouvées sont en accord avec des calculs effectués dans des conditions similaires. Hopper & al. [35] par exemple, trouvent des températures supérieures à  $10000^\circ K$  pour une impulsion de  $20J/cm^2$  et de durée  $30ns$ , avec des inclusions de platine de cent nanomètres, dans de la silice .

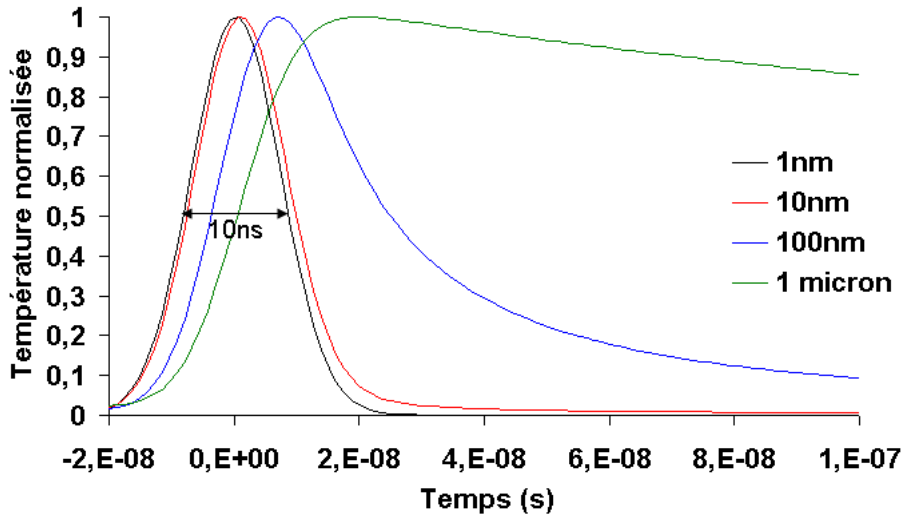


FIG. 5.2 – Variations de température normalisées, pour différentes tailles de défauts métalliques inclus dans de la silice. La durée d’impulsion est de 10ns.

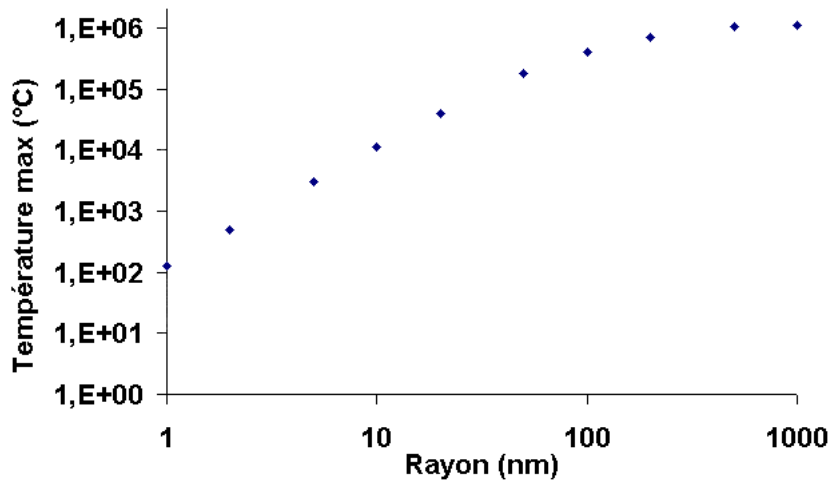


FIG. 5.3 – Températures maximales atteintes pour différentes tailles de défauts métalliques inclus dans de la silice (Irradiation de  $10J/cm^2$  à 1064nm, de largeur à mi-hauteur 10ns).

### 5.4.3 Discussion

D’après ces calculs un défaut métallique de taille quelques nanomètres inclus dans de la silice peut initier un processus d’endommagement, puisque les températures induites (supérieures à plusieurs milliers de degrés) permettraient d’atteindre la vaporisation du matériau pour des irradiations supérieures à quelques dizaines de  $J/cm^2$ . Cependant cette estimation est difficile puisque on ne connaît pas les valeurs  $n'$  et  $n''$  ainsi que les paramètres thermiques du défaut. Cependant

le facteur  $\beta$  peut être estimé, grâce aux calculs électromagnétiques effectués par différentes équipes : dans les cas de défauts allant du nanomètre à la dizaine de nanomètre, ce facteur peut atteindre 2 à 5 [19, 20, 22], ce qui laisse penser que nos calculs sous-estiment les température atteintes.

Soulignons également que ce modèle simple nous permet seulement de discuter des conditions d'initiation de l'endommagement. En effet, pour modéliser les processus d'endommagement, il faudrait tenir compte des changements de phase du matériau, de pression, de création d'un plasma, de la modification des propriétés du matériau environnant...

En considérant alors l'atteinte de la température de fusion du défaut comme critère d'initiation d'endommagement, nous pouvons obtenir une nouvelle estimation de la taille du défaut en fonction de son coefficient d'extinction. Ce calcul a été effectué pour une énergie de  $100 J/cm^2$ , les résultats figurent dans le tableau 5.3.

$n''$	1	$10^{-1}$	$10^{-2}$	$10^{-3}$	$10^{-4}$
R	1,2 nm	2 nm	20 nm	90 nm	$5\mu m$

TAB. 5.3 – Diamètres de particules en fonction de l'indice imaginaire, nécessaires pour atteindre le point de fusion du défaut

Nous voyons donc que jusqu'à des coefficients d'extinction de  $10^{-3}$ , nous pouvons imaginer que des défauts de taille quelques dizaines de nanomètres peuvent initier des endommagements dans le volume ou la surface de la silice massive.

## 5.5 Application à la photothermie

Nous avons montré que des inclusions nanométriques métalliques pouvaient initier un endommagement dans de la silice, et qu'elles pouvaient être détectées. Nous cherchons maintenant à évaluer l'influence des paramètres de mesures (tel que la fréquence de modulation) sur l'évolution du signal et la répartition de température dans le matériau. Nous commencerons tout d'abord par rappeler succinctement les principes de la photothermie.

### 5.5.1 Principe des mesures photothermiques

Le principe des techniques photothermiques peut être résumé comme suit. Tout élément d'indice complexe absorbe une partie de la lumière qu'il intercepte. Cette absorption conduit à une élévation de température dans le composant, avec les effets associés de conduction de la chaleur, convection et rayonnement. Il en résulte un gradient de température qui provoque un gradient spatial tri-

dimensionnel de l'indice de réfraction :

$$\overrightarrow{\text{grad}}[n(T)] = \frac{\partial n}{\partial T} \overrightarrow{\text{grad}}[T] \quad (5.32)$$

Du gradient de température résultent également des phénomènes thermo-élastiques : dilatation des matériaux et déformation des surfaces. Ces phénomènes thermo-optiques et thermo-élastiques sont alors responsables de la déviation ou déflexion de tout faisceau intercepté par le champ de température.

De façon générale, le premier faisceau est qualifié de "faisceau pompe", car c'est sa puissance qui est absorbée par le composant, et qui provoque le gradient de température ou d'indice. Quant au deuxième faisceau, il est qualifié de "faisceau sonde", car la mesure de sa déviation nous donne accès à des informations sur l'absorption et les paramètres thermiques du composant et des milieux environnants.

Les techniques photothermiques sont basées sur une dépendance temporelle de l'éclairement reçu, qui peut être modulée ou pulsée. Les principales configurations de cette technique sont représentées figure 5.4.

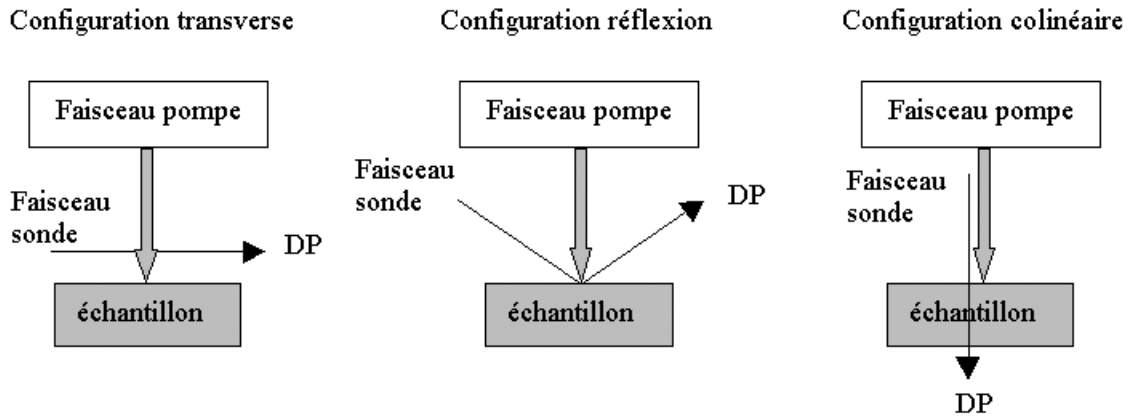


FIG. 5.4 – Principales configuration des techniques photothermiques

### 5.5.2 Calcul en régime harmonique

La source temporelle est modulée à une fréquence  $F$  (ou à la pulsation  $\Omega$ ) que nous écrirons de la façon suivante [125] :

$$S(\rho, t) = S_0 \frac{1 + \cos(\Omega t)}{2} \quad (5.33)$$

L'équation de la chaleur s'écrit alors :

$$\Delta T(\rho, t) - \frac{1}{a} \frac{\partial T(\rho, t)}{\partial t} = -\frac{S_0}{2b} \frac{1 + \cos(\Omega t)}{2} \quad (5.34)$$

La température peut donc s'écrire sous la forme  $T = T_0 + T(\Omega)$ ,  $T_0$  étant la composante continue de la température et  $T(\Omega)$  la composante modulée qui nous intéresse. Cette composante peut s'écrire de la façon suivante :

$$\begin{aligned} T(\Omega) &= T [\cos(\Omega t + \varphi)] \\ &= \Re (T e^{-j\varphi} e^{-j\Omega t}) \\ &= \Re (\dot{T} e^{-j\varphi}) \end{aligned} \quad (5.35)$$

La source s'écrivant :

$$S(\Omega) = \Re \left( -\frac{S_0}{2b} e^{-j\Omega t} \right) \quad (5.36)$$

$\dot{T}$  est alors solution de :

$$\Delta \dot{T}(\rho, t) - \frac{1}{a} \frac{\partial \dot{T}(\rho, t)}{\partial t} = -\frac{S_0}{2b} \quad (5.37)$$

avec les conditions aux limites :

$$\dot{T}_1(0, \Omega) = \text{valeur finie} \quad (5.38)$$

$$\dot{T}_2(+\infty, \Omega) = 0 \quad (5.39)$$

et les conditions à l'interface :

$$\dot{T}_1(R, t) = \dot{T}_2(R, t) \quad (5.40)$$

$$b_1 \left. \frac{\partial \dot{T}_1}{\partial \rho} \right|_R = b_2 \left. \frac{\partial \dot{T}_2}{\partial \rho} \right|_R \quad (5.41)$$

La solution  $\dot{T}$  est trouvée numériquement de la même façon que dans la partie précédente, la composante modulée s'obtenant à partir de cette solution :

$$T(\Omega) = \text{Mod}(\dot{T}) \cos(\Omega t) \quad (5.42)$$

### 5.5.3 Effet de la fréquence

Nous avons ainsi programmé ces expressions dans le cas de particules absorbantes, avec différents rayons allant du micromètre au nanomètre, et pour différentes fréquences de modulation allant du Hertz au Giga-Hertz. Pour ces calculs les valeurs de température sont normalisées, ce qui permet dans une première étape, de s'affranchir des effets liés à l'amplitude de la source. Les résultats numériques sont commentés pour les figures suivantes.

En figure 5.5, nous avons tracé l'élévation de température normalisée, à l'interface particule/silice pour des fréquences de modulation variant entre le Hertz et le Giga-Hertz.

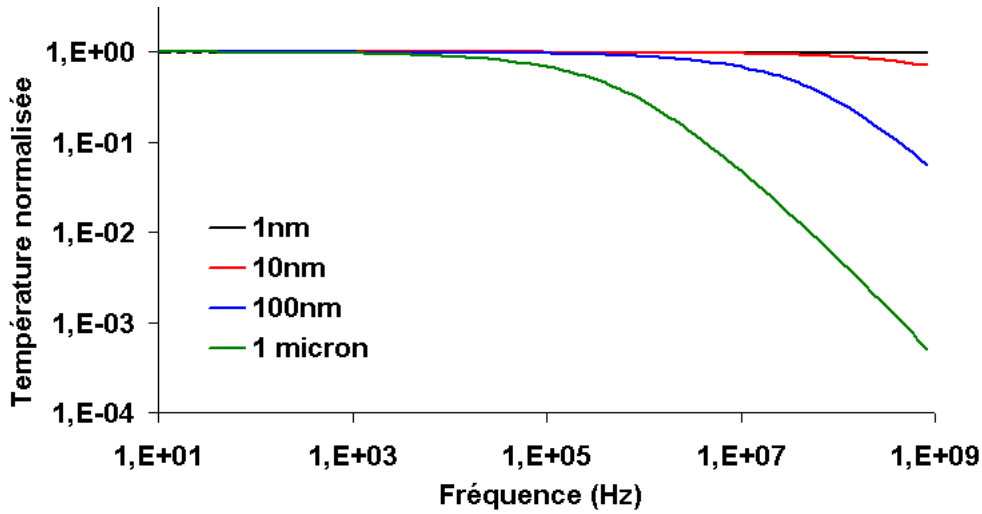


FIG. 5.5 – Elevations normalisées de la composante harmonique de la température, calculées à l'interface défaut/silice pour différentes tailles de défauts, et à des fréquences de modulation allant du Hertz au Giga-Hertz

On constate sur la figure 5.5, qu'entre le Hertz et le Mega-Hertz, la température varie de moins d'une décade quelle que soit la taille de la particule, et que cette variation diminue encore avec la taille de la particule. En conséquence, et à moins de travailler au Giga-Hertz, c'est le volume de la particule qui impose en premier lieu, via l'absorption qui en résulte, l'élévation de température. En d'autres termes, les effets de la fréquence sur l'élévation de température sont négligeables entre le Hertz et le Mega-Hertz, pour notre application liée à la détection de particules de diamètre sub-micrométrique.

Ces résultats sont à mettre en relation avec des calculs photothermiques effectués dans le cas d'un matériau absorbant irradié avec un faisceau Gaussien. Ces simulations indiquent qu'en diminuant la taille du faisceau, les effets de la fréquence deviennent négligeables pour des faisceaux micrométriques [121].

#### 5.5.4 Répartition spatiale de la température

Sur la figure 5.6, nous avons tracé la répartition spatiale de la température sur une distance égale à 10 fois le rayon de la particule, dans le cas d'une particule de rayon 10 nm. Ces calculs montrent que l'échauffement reste localisé sur le défaut et s'étend peu dans la silice environnante.

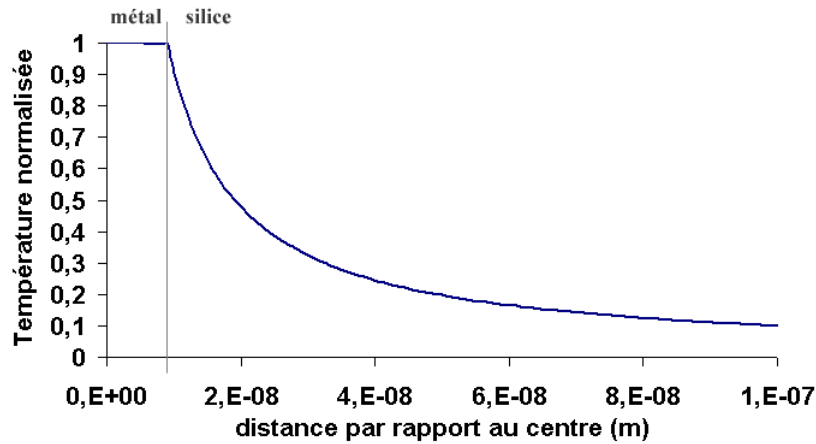


FIG. 5.6 – Elevations normalisées de la composante harmonique de la température en fonction de la distance par rapport au centre de la particule. Calcul effectué pour un défaut de rayon 10nm, à une fréquence de modulation de 1kHz.

## 5.6 Conclusion

Nous avons réalisé une étude théorique concernant la possibilité de détecter de façon non destructive les nano-centres précurseurs de l'endommagement.

Pour cela nous avons calculé tout d'abord la puissance absorbée par des particules en fonction de leur taille et de leur indice imaginaire.

En comparant ensuite la puissance absorbée par les défauts à la détectivité des méthodes de déflexion photothermique, nous avons conclu que la détection de particules de coefficient d'extinction de  $10^{-3}$  et de rayon 10 nm était possible à condition d'optimiser la focalisation des faisceaux et la puissance incidente.

Puis nous avons montré par un calcul thermique que des particules métalliques de taille nanométrique pouvaient initier un endommagement dans la silice lors d'une irradiation nanoseconde. En considérant un coefficient d'extinction variant entre 1 et  $10^{-3}$ , nous avons trouvé des conditions sur la taille des défauts pour initier un endommagement dans le volume de la silice.

Les calculs de l'augmentation modulée de température ont montré que dans le cas de particules de rayon inférieur au micromètre, l'extension spatiale du signal photothermique dépend peu de la fréquence à moins de travailler à des fréquences de l'ordre du Giga-Hertz. Dans cette configuration c'est donc le volume de la particule qui impose l'élévation de température.

La détection de ces défauts étant théoriquement possible, sa réalisation pratique passe maintenant par l'amélioration de techniques existantes ou le développement de nouveaux outils. Dans ce sens un microscope photothermique a été développé au laboratoire [121], ainsi que des techniques de détection de diffusion photo-induite [126, 127].

## Chapitre 6

# EFFETS THERMIQUES DANS LES MATERIAUX ABSORBANTS : DEVELOPPEMENT D'OUTILS THEORIQUES ET EXPERIMENTAUX

Nous nous intéressons ici à un autre secteur d'application qui concerne les absorbeurs de lumière achromatiques, qui sont utilisés pour le micro ou macro-bafflage en particulier, ou pour l'élimination de raies parasites. Ces composants peuvent être réalisés à partir de séquences métal/diélectrique, et leur efficacité est liée à leur forte absorption ( $A > 0,99$ ). Des composants analogues sont aussi utilisés pour fabriquer des filtres Fabry-Pérot à réjection large-bande.

Il est évident, compte tenu des spécifications en absorption, que ces composants présentent une faible tenue au flux, que l'on voudrait pouvoir prédire. C'est l'objet de ce chapitre.

Ainsi un modèle thermique est développé pour appréhender les phénomènes d'endommagement laser dans les couches minces absorbantes. Puis ce modèle est validé par la comparaison aux mesures de seuil et aux morphologies observées par microscopie à force atomique.



## 6.1 Introduction

Nous allons nous intéresser au cas des couches métalliques, qui entrent en jeu dans la fabrication de nombreux composants optiques tels que des filtres ou miroirs interférentiels métaux/diélectriques[43, 128], des absorbeurs de lumière [129, 128]. . . Dans ces matériaux l'endommagement laser a clairement une origine thermique, et peut limiter leur utilisation sous fort flux laser[43].

Afin de mener cette étude, un modèle thermique est d'abord développé, pour quantifier les élévations de température dans un milieu semi-infini ou un matériau en couche mince, irradié par une impulsion laser de durée variable.

Ce modèle est ensuite validé par la confrontation des calculs à des mesures de seuil d'endommagements et des analyses morphologiques effectuées par microscopie à force atomique. Différents matériaux (nickel et or), irradiés avec des impulsions de durées variables, ont été utilisés pour tester la validité des hypothèses de calcul en fonction des conditions de tir.

## 6.2 Calcul des élévations de température dans les milieux absorbants, en régime continu et pulsé

Les calculs réalisés ici ont pour but de quantifier les élévations de température dans un milieu semi-infini ou une couche mince, éclairé par une onde plane. Nous considérerons que la température ne dépend que de la seule variable d'espace  $z$ , et nous traiterons le cas d'un laser en régime continu ou pulsé, en résolvant l'équation de la chaleur :

$$\frac{\partial T}{\partial t} - a_i \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} = \frac{a_i}{b_i} S(z, t) \quad (6.1)$$

où  $a_i$  et  $b_i$  sont respectivement la diffusivité thermique (en  $m^2s^{-1}$ ) et la conductivité thermique (en  $Wm^{-1}K^{-1}$ ) des différents milieux " i ", et  $S(z,t)$  la densité volumique de puissance calorifique, créée par l'irradiation dans le milieu absorbant.

Les hypothèses de travail sont les suivantes :

- seuls les phénomènes de conduction thermique interviennent dans les échanges de chaleur.
- les paramètres thermiques des milieux (diffusivité et conductivité) ne varient pas avec la température. Dans le cas que nous étudions par la suite (le nickel), les variations sont suffisamment faibles (moins de 10% de variations pour  $1000^\circ C$  d'élévation de température [130]) pour justifier cette hypothèse.
- Nous ne considérons pas les changements de phase du matériau. Ainsi, nous n'utiliserons les calculs développés que dans les domaines de température

## 6.2. CALCUL DES ÉLÉVATIONS DE TEMPÉRATURE DANS LES MILIEUX ABSORBANTS, EN RÉGIME CONTINU ET PULSÉ

---

correspondant à la phase solide du matériau.

La validité de ces hypothèses sera discutée lors de la comparaison des calculs aux résultats expérimentaux (partie 6.2.3)

### 6.2.1 Cas d'un dioptre

Tout d'abord, considérons le cas d'un dioptre air/matériau absorbant, éclairé par une onde plane (Fig 6.1).

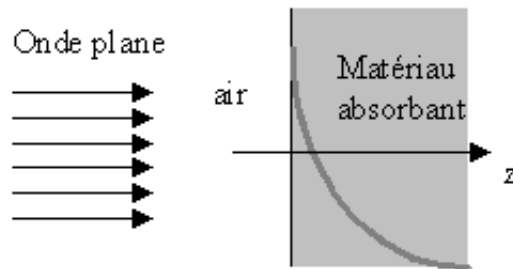


FIG. 6.1 – Dioptre air/milieu absorbant, éclairé par une onde plane

L'énergie incidente est totalement absorbée à l'intérieur du matériau. La source ainsi créée peut s'écrire sous la forme :

$$S(z, t) = S(t)exp(-\gamma z) \quad (6.2)$$

avec  $\gamma = \frac{4\pi}{\lambda}k_m$ , ( $n = n_m + jk_m$ ).

#### Irradiation de type échelon

L'irradiation débute à  $t=0$ , la source s'écrit de la façon suivante :

$$S(z, t) = S_0H(t)exp(-\gamma z) \quad (6.3)$$

Où H désigne la fonction de Heaviside.

Les équations à résoudre dans les différents milieux sont les suivantes :

– Milieu 1 (air)

$$\frac{\partial T_1}{\partial t} - a_1 \frac{\partial^2 T_1}{\partial z^2} = 0 \quad (6.4)$$

– Milieu 2 (milieu absorbant)

$$\frac{\partial T_2}{\partial t} - a_2 \frac{\partial^2 T_2}{\partial z^2} = \frac{a_2}{b_2} S(z, t) \quad (6.5)$$

Pour notre application, nous ne considérons que les variations de température par rapport à l'état initial. Les conditions initiales sont alors :

$$T_1(z, t = 0) = T_2(z, t = 0) = 0 \quad (6.6)$$

CHAPITRE 6. EFFETS THERMIQUES DANS LES MATERIAUX  
 ABSORBANTS : DEVELOPPEMENT D'OUTILS THEORIQUES ET  
 EXPERIMENTAUX

---

Les conditions aux limites, et les relations de continuité de la température et du flux de chaleur aux interfaces imposent :

$$T_1(0, t) = T_2(0, t) \quad (6.7)$$

$$b_1 \left( \frac{\partial T_1}{\partial z} \right)_{z=0} = b_{12} \left( \frac{\partial T_2}{\partial z} \right)_{z=0} \quad (6.8)$$

$$T_1(-\infty, t) = T_2(+\infty, t) = 0 \quad (6.9)$$

Afin de résoudre l'équation de la chaleur en régime transitoire, considérons la transformation de Laplace, par rapport à la variable temporelle :

$$T(z, t) \xrightarrow{T.L.} \widehat{T}(z, p) \quad (6.10)$$

D'où l'équation vérifiée par la transformée de Laplace de la température :

$$p\widehat{T}_i - a_i \frac{\partial^2 \widehat{T}_i}{\partial z^2} = \frac{a_i}{b_i} \widehat{S}(z, p) \quad (6.11)$$

Les solutions dans les différents milieux s'écrivent en tenant compte des conditions aux limites :

– dans l'air :

$$\widehat{T}_1(z, p) = A_1 \exp\left(\sqrt{\frac{p}{a_1}} z\right) \quad (6.12)$$

– dans le matériau absorbant :

$$\widehat{T}_2(z, p) = A_2 \exp\left(-\sqrt{\frac{p}{a_2}} z\right) + \frac{a_2}{b_2} \widehat{S}(z, p) * g(z, p) \quad (6.13)$$

$g(z, p)$  étant la fonction de Green solution de l'équation différentielle :

$$pg - a_2 \frac{\partial^2 g}{\partial z^2} = \delta(z) \quad (6.14)$$

avec  $\delta(z)$  la distribution de Dirac de la variable d'espace.

On montre facilement [131] que  $g(z, p)$  est donnée par :

$$g(z, p) = \frac{1}{\sqrt{a_2}} \frac{e^{-\sqrt{\frac{p}{a_2}} z}}{\sqrt{p}} \quad (6.15)$$

De plus la transformée de Laplace du terme source s'écrit sous la forme :

$$\widehat{S}(z, p) = \frac{S_0}{p} \exp(-\gamma z) \quad (6.16)$$

## 6.2. CALCUL DES ÉLÉVATIONS DE TEMPÉRATURE DANS LES MILIEUX ABSORBANTS, EN RÉGIME CONTINU ET PULSÉ

---

Il vient alors, après calcul de  $A_1$  et  $A_2$  grâce aux relations de continuité à l'interface, les solutions  $\widehat{T}_1$  et  $\widehat{T}_2$  dans l'espace de Laplace :

$$\widehat{T}_1(z, p) = \frac{S_0 \sqrt{a_2}}{\frac{b_1}{\sqrt{a_1}} + \frac{b_2}{\sqrt{a_2}}} \frac{e^{\sqrt{\frac{p}{a_1}} z}}{p \sqrt{p} (\sqrt{p} + \sqrt{a_2} \gamma)} \quad (6.17)$$

$$\begin{aligned} \widehat{T}_2(z, p) &= \frac{\frac{b_2}{\sqrt{a_2}} - \frac{b_1}{\sqrt{a_1}}}{\frac{b_1}{\sqrt{a_1}} + \frac{b_2}{\sqrt{a_2}}} \frac{S_0 a_2}{2b_2} \frac{e^{-\sqrt{\frac{p}{a_2}} z}}{p \sqrt{p} (\sqrt{p} + \sqrt{a_2} \gamma)} \\ &+ \frac{S_0 a_2}{2b_2} \left( \frac{e^{-\gamma z} - e^{-\sqrt{\frac{p}{a_2}} z}}{p \sqrt{p} (\sqrt{p} - \sqrt{a_2} \gamma)} + \frac{e^{-\gamma z}}{p \sqrt{p} (\sqrt{p} + \sqrt{a_2} \gamma)} \right) \end{aligned} \quad (6.18)$$

Après transformation de Laplace inverse (détail du calcul en annexe E),  $T_1(z, t)$  et  $T_2(z, t)$  peuvent s'exprimer de la façon suivante :

$$T_1(z, t) = \frac{S_0 \sqrt{a_2}}{\frac{b_1}{\sqrt{a_1}} + \frac{b_2}{\sqrt{a_2}}} F \left( -\frac{z}{\sqrt{a_1}}, \sqrt{a_2} \gamma \right) \quad (6.19)$$

$$\begin{aligned} T_2(z, t) &= \frac{\frac{b_2}{\sqrt{a_2}} - \frac{b_1}{\sqrt{a_1}}}{\frac{b_1}{\sqrt{a_1}} + \frac{b_2}{\sqrt{a_2}}} \frac{a_2 S_0}{2b_2} F \left( \frac{z}{\sqrt{a_2}}, \sqrt{a_2} \gamma \right) \\ &+ \frac{a_2 S_0}{2b_2} \left( e^{-\gamma z} (F(0, -\gamma \sqrt{a_2}) + F(0, \gamma \sqrt{a_2})) - F\left(\frac{z}{\sqrt{a_2}}, -\gamma \sqrt{a_2}\right) \right) \end{aligned} \quad (6.20)$$

Avec :

$$F(\alpha, \beta) = \frac{2\sqrt{t}}{\sqrt{\pi}\beta} e^{-\frac{\alpha^2}{4t}} - \frac{(1 + \beta\alpha)}{\beta^2} \operatorname{erfc} \left( \frac{\alpha}{2\sqrt{t}} \right) + \frac{e^{\beta\alpha} e^{\beta^2 t}}{\beta^2} \operatorname{erfc} \left( \beta\sqrt{t} + \frac{\alpha}{2\sqrt{t}} \right) \quad (6.21)$$

La fonction  $\operatorname{erfc}$  étant définie de la façon suivante :  $\operatorname{erfc}(x) = 1 - \operatorname{erf}(x)$  avec  $\operatorname{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-u^2} du$ .

Sur les figures 6.2 et 6.3, nous calculons la répartition de la température dans un métal (nickel) soumis à un flux laser continu d'une densité de puissance de  $10^4 \text{ W/cm}^2$  pendant 10 ms à 1064nm. Les paramètres des matériaux utilisés sont donnés dans le tableau 6.1

La température croit en  $\sqrt{t}$  quand  $t \rightarrow +\infty$ , puisque dans nos hypothèses de travail nous ne considérons pas les pertes de chaleur par radiation et convection. Cependant nous n'utilisons ces calculs que pour des températures inférieures au point de fusion du matériau ( $1728^\circ\text{C}$  pour le nickel). Nous expliciterons donc dans le paragraphe 6.2.3, les domaines temporels de validité de ce modèle, après comparaison aux données expérimentales.

Notons également que dans le cas que nous venons de traiter, les élévations de température se font en profondeur dans le matériau (de l'ordre du millimètre),

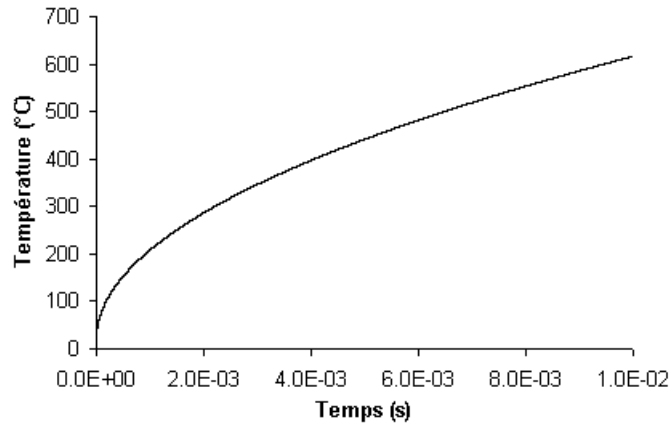


FIG. 6.2 – Elévation de température à la surface du Nickel, irradié avec une densité de puissance de  $10^4 W/cm^2$  à 1064nm, pendant 10ms

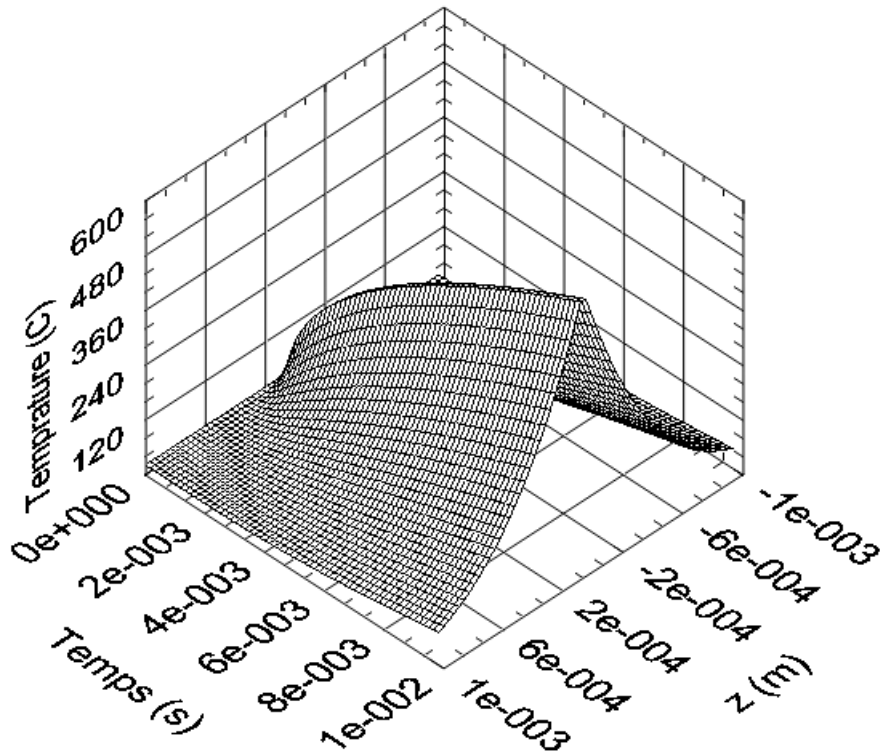


FIG. 6.3 – Répartition bidimensionnelle de la température dans l'air ( $z < 0$ ) et le métal ( $z > 0$ ), irradié avec une densité de puissance de  $10^4 W/cm^2$  à 1064nm, pendant 10ms

## 6.2. CALCUL DES ÉLÉVATIONS DE TEMPÉRATURE DANS LES MILIEUX ABSORBANTS, EN RÉGIME CONTINU ET PULSÉ

Matériaux	Air	Métal (Nickel)	Source
$n_m$	1	2.8	[128]
$k_m$	0	4	[128]
Diffusivité $m^2 s^{-1}$	2.05E-5	2.3E-5	[130]
Conductivité $W m^{-1} K^{-1}$	2.6E-2	90.7	[130]
Température de fusion		1728°C	[130]

TAB. 6.1 – Paramètres de l’air et du nickel

bien que la source soit localisée sur une distance de l’ordre de la centaine de nanomètres. Par exemple, pour une élévation de température de 600°C à la surface du Nickel après 10ms d’irradiation, l’élévation de température à 1mm de profondeur dans le Nickel est d’une centaine de degrés (figure 3). Ceci implique que pour traiter le cas des couches minces métalliques (épaisseur inférieure au micron), nous devons développer un modèle spécifique (partie 6.2.2).

### Irradiation en régime pulsé

Nous nous intéressons maintenant au cas d’une irradiation en régime pulsé, que nous assimilons à une fenêtre temporelle de longueur  $\tau$  secondes (figure 6.4).

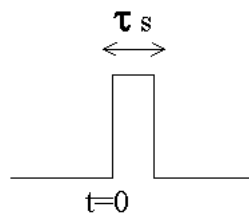


FIG. 6.4 – fenêtre temporelle correspondant à l’irradiation

La source de chaleur dans le matériau absorbant peut s’écrire de la façon suivante :

$$S(z, t) = S_0 (H(t) - H(t - \tau)) \exp(-\gamma z) \quad (6.22)$$

En utilisant les résultats de la partie précédente, nous obtenons ainsi les expressions de la température dans les cas suivants :

- Pour  $0 < t < \tau$ , on retrouve le cas traité précédemment

– Pour  $t \geq \tau$ , l'expression de la température peut s'écrire :

$$T(z, t) = T'(z, t) - T'(z, t - \tau) \quad (6.23)$$

où  $T'(z, t)$  est la réponse à un Heaviside temporel, cas traité précédemment.

Des applications sont données figure 6.5 et 6.6 : la répartition de la température est calculée dans un métal (nickel) soumis à un flux laser pulsé de 10ns, avec une densité de puissance de  $10MW/cm^2$  (soit  $0.1J/cm^2$ ).

Remarquons que dans le cas d'irradiations de l'ordre de la nanoseconde (figure 6.6) les variations de température sont localisées beaucoup plus près de la surface (quelques centaines de nanomètres). La chaleur n'ayant pas le temps de se propager dans le matériau, les augmentations de température restent localisées près de la source.

## 6.2.2 Cas d'une couche mince

Le cas d'une couche mince absorbante, déposée sur un substrat non absorbant est étudié ici (figure 6.7). Les premiers calculs effectués dans le cas d'un matériau absorbant semi-infini vont nous servir de base pour traiter le cas des couches minces absorbantes. Nous pourrions notamment comparer les résultats en faisant tendre l'épaisseur de la couche vers l'infini (partie 6.2.3).

La source créée dans le matériau absorbant par l'irradiation laser s'exprime de la même façon que précédemment. Cependant, à la différence du cas semi-infini, suivant l'épaisseur de la couche, l'énergie incidente peut ne pas être totalement absorbée : la répartition du champ électrique dans une couche de Nickel est représentée figure 6.8. Les indices de réfraction et d'extinction utilisés pour ce calcul sont donnés dans le tableau 6.2.

### Irradiation en régime continu

L'équation de la chaleur que nous avons à résoudre peut s'écrire dans les différents milieux de la façon suivante :

$$\frac{\partial T_0}{\partial t} - a_0 \frac{\partial^2 T_0}{\partial z^2} = 0 \quad \text{air} \quad (6.24)$$

$$\frac{\partial T_1}{\partial t} - a_1 \frac{\partial^2 T_1}{\partial z^2} = \frac{a_1}{b_1} S_0 H(t) \exp(-\gamma z) \quad \text{couche} \quad (6.25)$$

$$\frac{\partial T_2}{\partial t} - a_2 \frac{\partial^2 T_2}{\partial z^2} = 0 \quad \text{substrat} \quad (6.26)$$

## 6.2. CALCUL DES ÉLÉVATIONS DE TEMPÉRATURE DANS LES MILIEUX ABSORBANTS, EN RÉGIME CONTINU ET PULSÉ

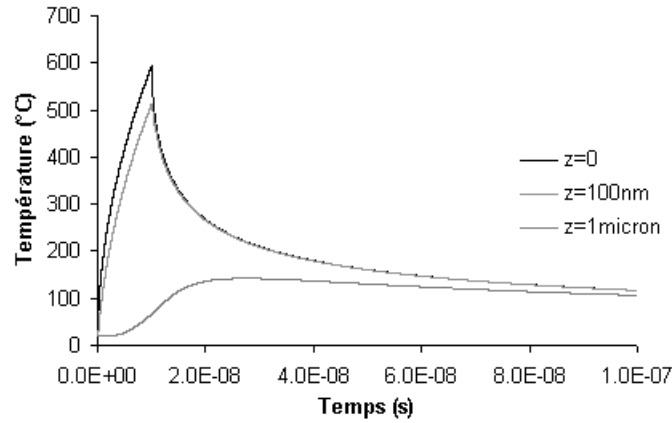


FIG. 6.5 – Elévation de température à différentes profondeurs dans du Nickel, irradié avec une densité de puissance de  $10\text{MW}/\text{cm}^2$  à  $1064\text{nm}$ , pendant  $10\text{ns}$  (soit  $0.1\text{J}/\text{cm}^2$ ).

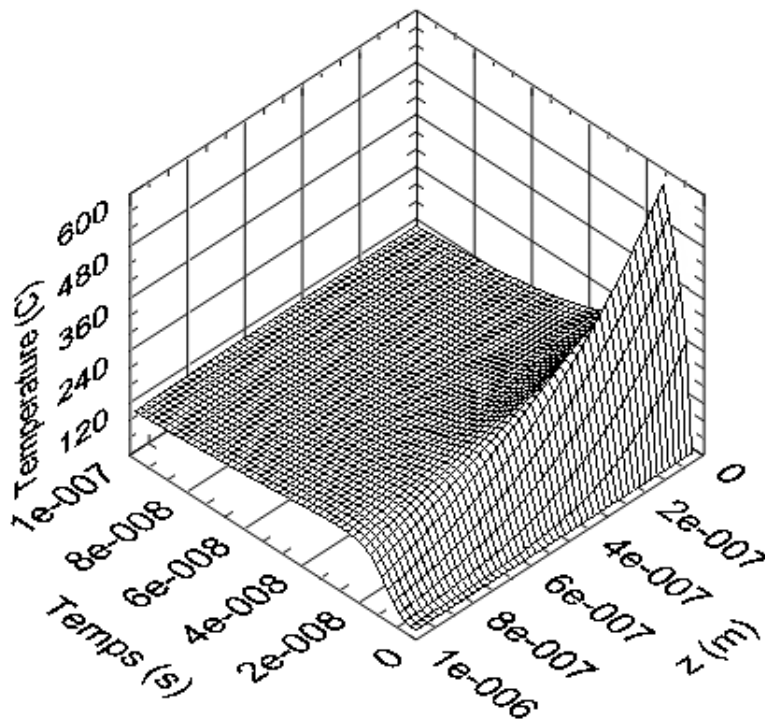


FIG. 6.6 – Répartition bidimensionnelle de la température dans le métal ( $z > 0$ ), irradié avec une densité de puissance de  $10\text{MW}/\text{cm}^2$  à  $1064\text{nm}$ , pendant  $10\text{ns}$  (soit  $0.1\text{J}/\text{cm}^2$ ).



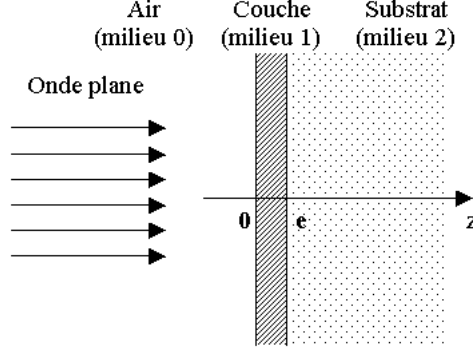


FIG. 6.7 – Définition des axes et des milieux

Après transformation de Laplace par rapport à la variable temporelle, ce système s'écrit :

$$p\hat{T}_0 - a_0 \frac{\partial^2 \hat{T}_0}{\partial z^2} = 0 \quad \text{air} \quad (6.27)$$

$$p\hat{T}_1 - a_1 \frac{\partial^2 \hat{T}_1}{\partial z^2} = \frac{a_1 S_0}{b_1 p} \exp(-\gamma z) \quad \text{couche} \quad (6.28)$$

$$p\hat{T}_2 - a_2 \frac{\partial^2 \hat{T}_2}{\partial z^2} = 0 \quad \text{substrat} \quad (6.29)$$

Les solutions dans les différents milieux sont alors :

$$\hat{T}_0(z, p) = T_0^-(p) e^{-j\alpha_0(p)z} \quad (6.30)$$

$$\hat{T}_1(z, p) = T_1^+(p) e^{j\alpha_0(p)z} + T_1^-(p) e^{-j\alpha_0(p)z} + \frac{a_1}{b_1} \hat{S}(z, p) * g(z, p) \quad (6.31)$$

$$\hat{T}_2(z, p) = T_2^+(p) e^{j\alpha_2(p)z} \quad (6.32)$$

Avec  $\alpha_i(p) = j\sqrt{\frac{p}{a_i}}$ , et  $g(z, p)$  la fonction de Green définie équation 6.15.

Calculons le terme source de l'équation 6.31 :

$$\frac{a_1}{b_1} \hat{S} * g = \frac{\sqrt{a_1}}{2b_1\sqrt{p}} \int_0^{+\infty} \hat{S}(z', p) e^{-\sqrt{\frac{p}{a_1}}|z-z'|} dz' \quad (6.33)$$

$$= \frac{\sqrt{a_1}}{2b_1\sqrt{p}} \frac{S_0}{p} \int_0^e e^{\gamma z'} e^{-\sqrt{\frac{p}{a_1}}|z-z'|} dz' \quad (6.34)$$

$$= \frac{\sqrt{a_1}}{2b_1\sqrt{p}} \frac{S_0}{p} \left[ \frac{e^{j\alpha_1 z} - e^{-\gamma z}}{\gamma + j\alpha_1} + \frac{e^{-\gamma z} - e^{-j\alpha_1 z - \gamma e + j\alpha_1 e}}{\gamma - j\alpha_1} \right] \quad (6.35)$$

6.2. CALCUL DES ÉLÉVATIONS DE TEMPÉRATURE DANS LES MILIEUX  
 ABSORBANTS, EN RÉGIME CONTINU ET PULSÉ

Matériaux	Air	Métal (Nickel)	Substrat (silice)	Source
$n_m$	1	2.8	1.52	[128]
$k_m$	0	4	0	[128]
Diffusivité $m^2s^{-1}$	2.05E-5	2.3E-5	8.34E-7	[130]
Conductivité $Wm^{-1}K^{-1}$	2.6E-2	90.7	1.38	[130]
Température de fusion		1728°C	1883°C	[130]

TAB. 6.2 – Paramètres air/nickel/silice

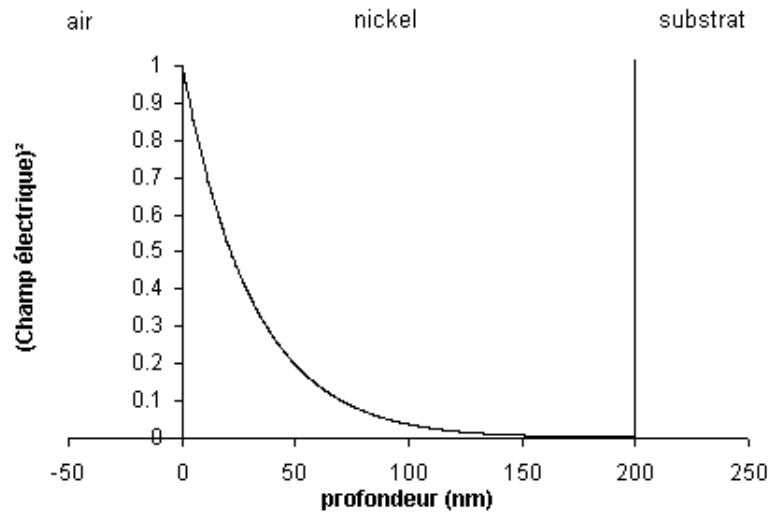


FIG. 6.8 – Répartition du carré du champ électrique dans une couche mince de nickel d'épaisseur 200 nm

CHAPITRE 6. EFFETS THERMIQUES DANS LES MATERIAUX  
 ABSORBANTS : DEVELOPPEMENT D'OUTILS THEORIQUES ET  
 EXPERIMENTAUX

---

Les relations de continuité aux interfaces nous permettent d'écrire le système matriciel suivant :

$$\begin{pmatrix} 1 & -1 & -1 & 0 \\ b_0\alpha_0 & -b_1\alpha_1 & b_1\alpha_1 & 0 \\ 0 & e^{-j\alpha_1 e} & e^{j\alpha_1 e} & -e^{-j\alpha_2 e} \\ 0 & b_1\alpha_1 e^{-j\alpha_1 e} & -b_1\alpha_1 e^{j\alpha_1 e} & b_2\alpha_2 e^{j\alpha_2 e} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} T_0^- \\ T_1^- \\ T_1^+ \\ T_2^+ \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\frac{1}{2b_1j\alpha_1} \frac{S_0}{p} \left[ \frac{1-e^{-\gamma e} e^{j\alpha_1 e}}{\gamma-j\alpha_1} \right] \\ \frac{1}{2} \frac{jS_0}{p} \left[ \frac{e^{-\gamma e} e^{j\alpha_1 e} - 1}{\gamma-j\alpha_1} \right] \\ \frac{1}{2b_1j\alpha_1} \frac{S_0}{p} \left[ \frac{e^{j\alpha_1 e} - e^{-\gamma e}}{\gamma+j\alpha_1} \right] \\ \frac{1}{2} \frac{jS_0}{p} \left[ \frac{e^{j\alpha_1 e} - e^{-\gamma e}}{\gamma+j\alpha_1} \right] \end{pmatrix} \quad (6.36)$$

qui fournit par résolution les composantes  $T_i^\pm(p)$ .

Nous résolvons ce système numériquement. La température est ensuite obtenue par transformée de Laplace inverse, effectuée numériquement. Pour cela nous utilisons la formule de Meslin-Fourier [132] :

$$f(t) = \frac{1}{2i\pi} \int_{\Delta} \widehat{f}(p) e^{pt} dp \quad (6.37)$$

avec  $\Delta$  un axe parallèle à l'axe imaginaire du plan complexe, et de même sens, "laissant à sa gauche" toutes les singularités de  $\widehat{f}(p)$ . Dans le cas que nous traitons, les fonctions  $T_i^\pm(p)$  ont une singularité en 0, nous utiliserons donc l'axe  $\Delta = 1 + j\beta$  (figure 6.9).

Une application est donnée figure 6.10 : la répartition de la température est cal-

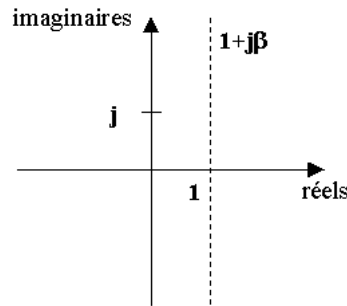


FIG. 6.9 – Axe d'intégration représenté dans le plan complexe

culée dans une couche métallique (nickel) soumise à un flux laser continu d'une densité de puissance de  $10^4 W/cm^2$  pendant 10 ms à 1064nm. Nous pouvons observer que pour des densités de puissance similaires, l'élévation de température d'une couche métallique opaque (200nm sur la figure 6.10), est supérieure à celle obtenue en irradiant un métal semi-infini (figure 6.2 présentée précédemment).

## 6.2. CALCUL DES ÉLÉVATIONS DE TEMPÉRATURE DANS LES MILIEUX ABSORBANTS, EN RÉGIME CONTINU ET PULSÉ

---

En effet, dans le cas d'une couche, la chaleur est confinée, et n'est pas évacuée par le substrat faiblement conducteur, comme elle peut l'être dans le cas d'un métal semi-infini. Ceci peut s'observer sur la figure 6.11, où la répartition bidimensionnelle de la température est calculée dans les mêmes conditions que pour la figure 6.3, et révèle un échauffement localisé dans la couche ( $0 < z < 200nm$ ).

### Irradiation en régime pulsé

Les expressions de la température dans le cas d'une irradiation impulsionnelle se calculent de la même façon que dans le cas du matériau semi infini, c'est à dire :

- Pour  $0 < t < \tau$ , on retrouve le cas traité précédemment
- Pour  $t \geq \tau$ , l'expression de la température peut s'écrire :

$$T(z, t) = T'(z, t) - T'(z, t - t) \quad (6.38)$$

où  $T'(z, t)$  est la réponse à un Heaviside temporel, cas traité précédemment.

### 6.2.3 Comparaison des 2 modèles, convergence et domaines de validité

#### Convergence des 2 modèles

Nous pouvons vérifier sur la figure 6.12 que si nous appliquons le modèle thermique monocouche à des couches absorbantes très épaisses, les élévations de températures obtenues correspondent à celle du matériau infini. Ceci confirme la validité de nos calculs.

#### Domaines d'utilisation

Compte tenu de ce qui vient d'être montré dans le cas d'irradiations millisecondes (figure 6.12), la couche de métal peut être considérée comme "infinie" thermiquement pour des épaisseurs centimétriques. Nous utiliserons donc le modèle thermique monocouche pour traiter le cas des couches minces soumises à ces durées d'impulsions. En ce qui concerne des irradiations nanosecondes la localisation des élévations de température près de la source (figure 6.6) fait que nous pourrons utiliser le modèle du matériau semi-infini pour traiter le cas des couches minces irradiées en régime nanoseconde.

#### Influence de l'épaisseur de la couche

Les épaisseurs des couches minces optiques varient de la dizaine de nanomètre au micron. Dans le cas de couches métalliques absorbantes, nous pouvons constater que l'épaisseur a très peu d'influence sur les élévations de température induites (figure 6.13).

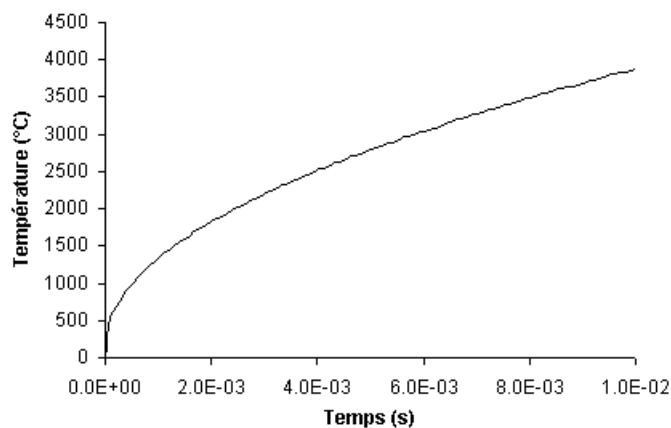


FIG. 6.10 – Elévation de température à la surface d'une couche de nickel, irradiée avec une densité de puissance de  $10^4 W/cm^2$  à  $1064nm$ , pendant  $10ms$  (notons que le calcul n'est valide que jusqu'à la température de fusion)

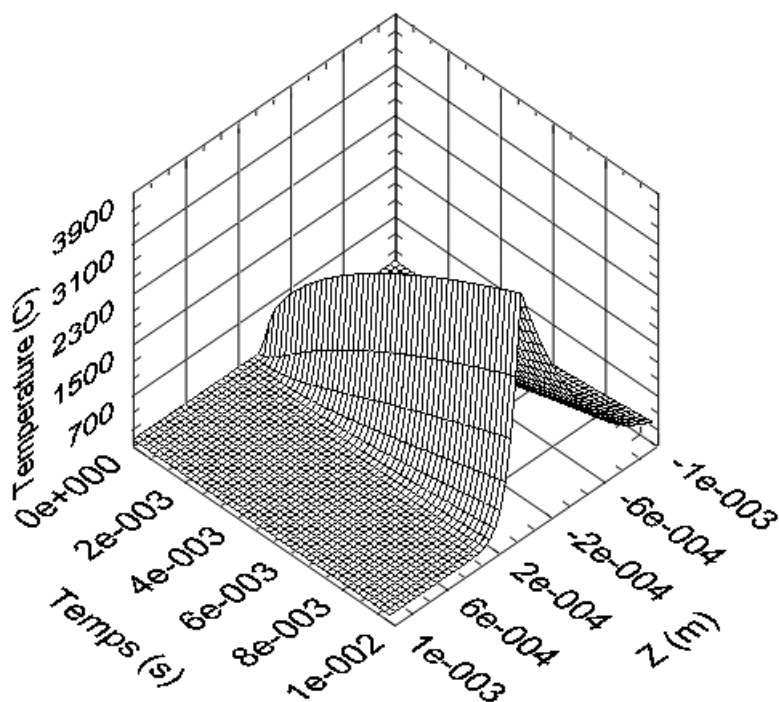


FIG. 6.11 – Répartition bidimensionnelle de la température dans l'air ( $z < 0$ ), le métal ( $0 < z < 200nm$ ) et le substrat ( $z > 200nm$ ), pour une couche irradiée avec une densité de puissance de  $10^4 W/cm^2$  à  $1064nm$ , pendant  $10ms$

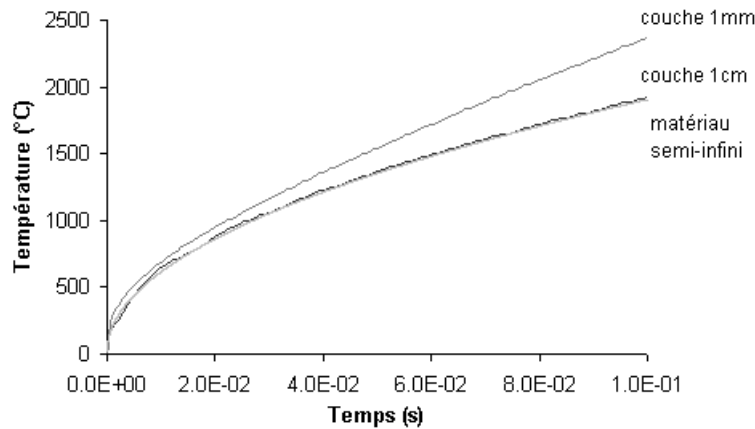


FIG. 6.12 – Elévations de température à la surface du Nickel dans 3 cas différents : couche de 1mm, 1cm et matériau semi-infini. Irradiation dans les 3 cas avec une densité de puissance de  $10^4 W/cm^2$  à 1064nm, pendant 100ms

## 6.3 Validation des modèles - Comparaison aux résultats expérimentaux

Après avoir présenté les modèles thermiques utilisés, nous allons maintenant confronter les calculs aux résultats expérimentaux. Nous pourrions ainsi vérifier la justesse des hypothèses de travail suivant les paramètres de la couche et les conditions de tirs.

### 6.3.1 Configuration expérimentale

Deux lasers 1064nm sont disponibles sur le banc d'endommagement, permettant d'effectuer des irradiations avec différentes durées d'impulsions (figure 6.14). Un premier laser YAG pulsé, de durée d'impulsion 7ns est focalisé sur l'échantillon avec une taille de spot de  $25\mu m$ . Le deuxième laser est un YAG continu, focalisé sur  $35\mu m$  au niveau de l'échantillon. Un obturateur électronique nous permet de faire varier les durées de tir du laser continu de quelques secondes à  $1/8000s$ . Les énergies sont mesurées pour chaque tir grâce à un détecteur pyroélectrique et un calorimètre. L'échantillon étant observé en temps réel grâce au microscope, le critère d'endommagement est l'apparition d'une modification de la surface, visible par ce moyen.

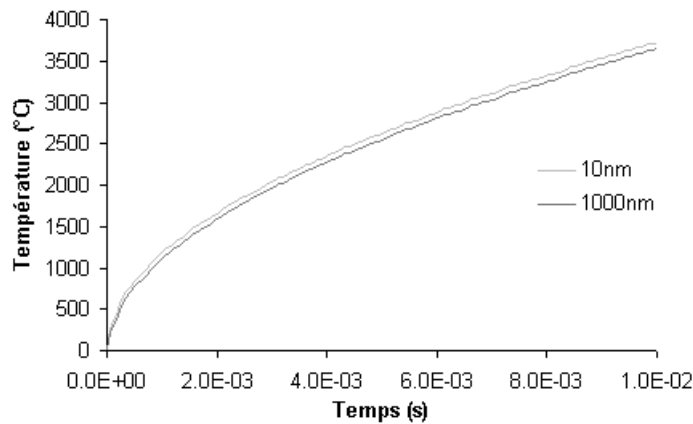


FIG. 6.13 – Elévations de température à la surface de couches de nickel de 10 et 1000nm, irradiées avec une densité de puissance de  $10^4 W/cm^2$  à 1064nm, pendant 10ms.

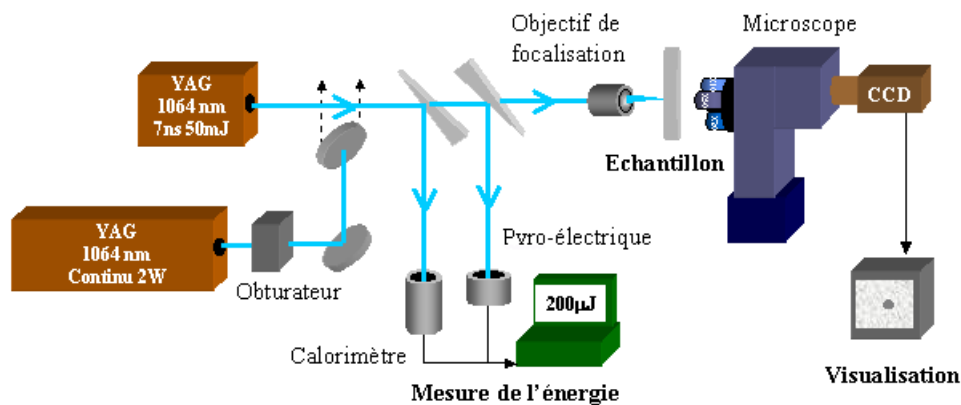


FIG. 6.14 – Configuration expérimentale

### 6.3.2 Comparaison mesures/calculs pour différentes longueurs d'impulsion

#### Durées d'impulsions de 1s à $10^{-4}s$

Des mesures de tenue au flux ont été effectuées sur une couche métallique de nickel et deux couches d'or d'épaisseurs différentes. Ces mesures ont été effectuées avec des durées d'impulsion variant sur 4 décades (1s à 1/8000s). Les résultats de ces mesures sont présentés figures 6.15 et 6.16. Les seuils d'endommagement correspondent à la densité de puissance maximale du faisceau, c'est-à-dire au centre du faisceau Gaussien.

Pour comparer ces résultats à la modélisation, le critère d'endommagement choisi dans les calculs est le dépassement de la température de fusion. Ce critère

### 6.3. VALIDATION DES MODÈLES - COMPARAISON AUX RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

---

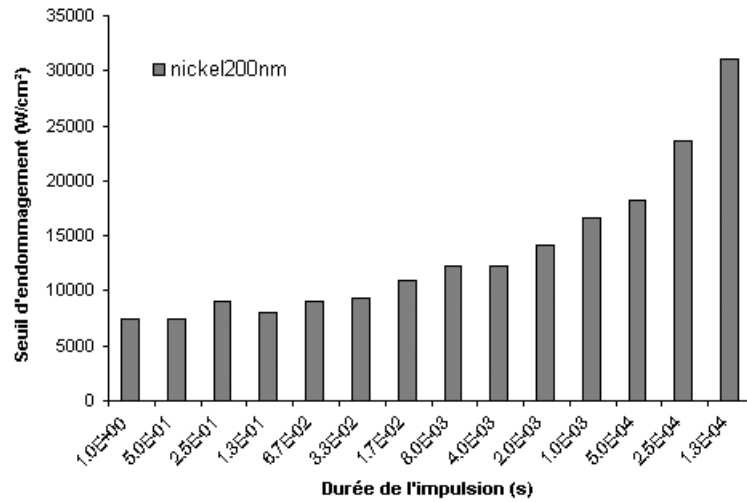


FIG. 6.15 – Seuil d'endommagement de couches de nickel, en fonction de la durée d'irradiation à 1064nm

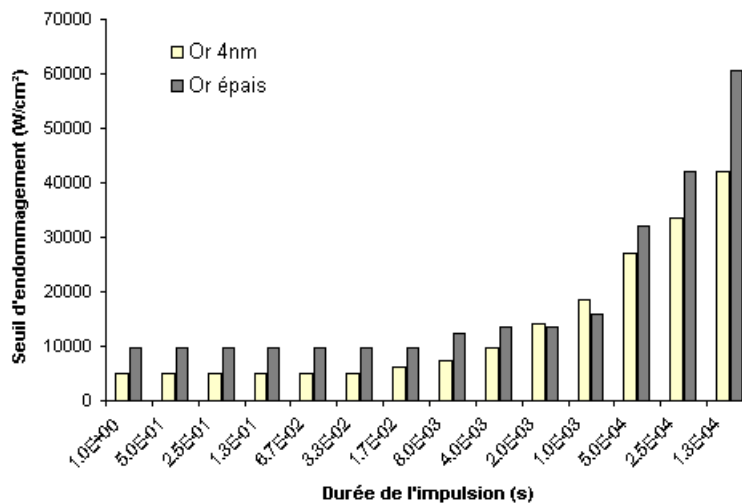


FIG. 6.16 – Seuil d'endommagement de couches d'or, en fonction de la durée d'irradiation à 1064nm



CHAPITRE 6. EFFETS THERMIQUES DANS LES MATERIAUX  
 ABSORBANTS : DEVELOPPEMENT D'OUTILS THEORIQUES ET  
 EXPERIMENTAUX

---

ayant été validé dans des études similaires (voir partie 1.5.4). Nous avons donc calculé dans chaque cas, le temps nécessaire pour atteindre cette température en fonction de la densité de puissance incidente. Les résultats de ces calculs sont comparés aux mesures sur les figures 6.17 à 6.19. L'épaisseur de la couche d'or épaisse n'étant pas connue avec précision, elle a été fixée à 100nm dans le calcul. Cette approximation étant justifiée par l'étude théorique sur l'influence de l'épaisseur de la couche, qui a montré que les élévations de température étaient similaires dans la gamme d'épaisseur 10 à 1000nm (partie 6.2.3). Les paramètres thermiques utilisés figurent dans le tableau 6.3.

	Or	Nickel	référence
Diffusivité $m^2s^{-1}$	12.7E-5	2.3E-5	
Conductivité $Wm^{-1}K^{-1}$	317	90.7	[130]
Température de fusion ( $^{\circ}C$ )	1336	1728	

TAB. 6.3 – paramètres thermiques de l'or et du nickel

En ce qui concerne les couches d'or (figures 6.18 et 6.19), le modèle est en accord avec les mesures qui ont des comportements similaires pour des durées d'impulsions variant de la microseconde à quelques millisecondes. Ceci valide notre modèle pour ces courtes durées d'irradiation. Le léger décalage des valeurs peut s'expliquer par le fait que l'on ait utilisé les paramètres du matériau massif et non ceux de la couche dans le calcul. Cependant, on peut noter que pour des impulsions plus longues, il n'y a pas concordance entre la prédiction et la mesure. Pour ces impulsions, il semble alors que l'hypothèse selon laquelle seule la conduction intervient dans les échanges de chaleur n'est plus valable. Dans ce cas, les pertes par convection et rayonnement doivent être prises en compte pour se rapprocher des conditions expérimentales.

Dans le cas de la couche de nickel d'épaisseur 200nm, le calcul correspond bien aux valeurs mesurées pour des faibles durées d'irradiations (inférieures à la milliseconde), et ceci bien que les paramètres du matériau massif aient également été utilisés pour le calcul. Le fait que cette couche soit une couche dense peut expliquer ce bon accord théorie/expérience. Pour des durées d'impulsions plus grandes, le modèle diverge comme pour le cas de l'or, les hypothèses n'étant plus valides.

Notons également que le modèle reste valide pour des durées d'impulsions plus grandes dans le cas de l'or par rapport au cas du nickel. Nous pouvons l'expliquer par les différences de paramètres thermiques entre ces deux matériaux. En effet la conduction thermique de l'or élevée (tableau 6.3), peut expliquer que les échanges de chaleur par conduction restent prépondérants plus longtemps.

6.3. VALIDATION DES MODÈLES - COMPARAISON AUX RÉSULTATS  
EXPÉRIMENTAUX

---

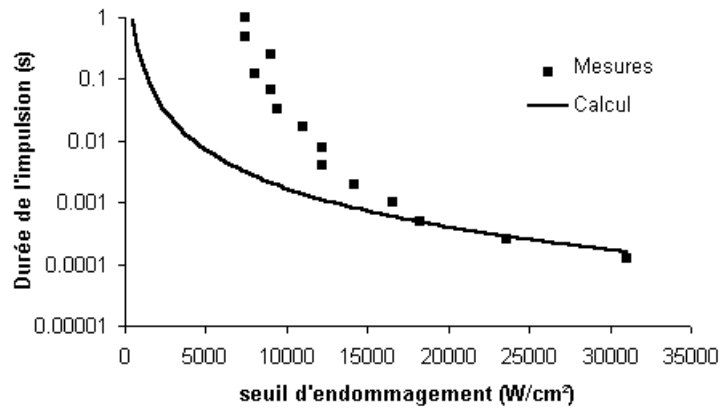


FIG. 6.17 – Comparaison des seuils d'endommagement calculés et mesurés pour une couche de nickel de 200nm

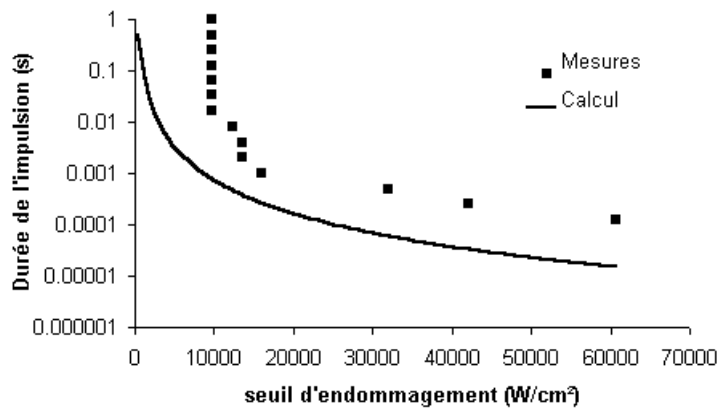


FIG. 6.18 – Comparaison des seuils d'endommagement calculés et mesurés pour une couche d'or épaisse (100nm dans le calcul)

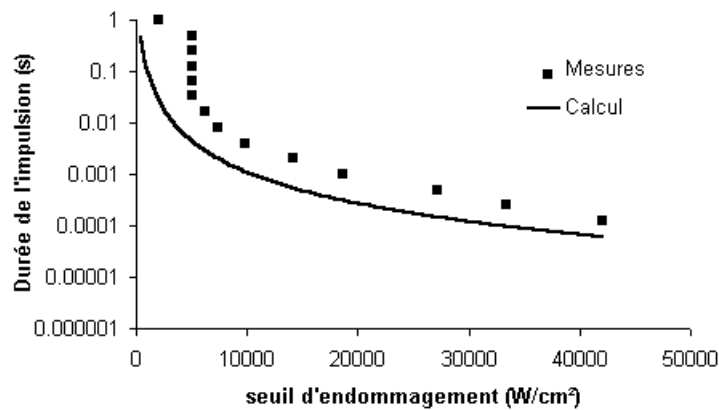


FIG. 6.19 – Comparaison des seuils d'endommagement calculés et mesurés pour une couche d'or de 4nm

### Impulsions nanosecondes

L'utilisation d'un laser pulsé nous a permis d'effectuer des tests sur les couches de nickel et d'or, avec une impulsion Gaussienne de largeur à mi-hauteur 7ns. Les énergies des tirs sont mesurées grâce à un détecteur pyroélectrique. Pour les modélisations cette impulsion Gaussienne sera approximée par une impulsion créneau, de largeur 7ns et contenant la même énergie que l'impulsion réelle. Comme il a été défini précédemment, le critère d'endommagement choisi dans les calculs est le dépassement de la température de fusion à la surface du matériau. Les comparaisons mesures/calculs sont présentés tableau 6.4.

	Seuil d'endommagement mesuré ( $J/cm^2$ )	Seuil d'endommagement calculé ( $J/cm^2$ )
Nickel 200nm	0.4	0.25
Or 4nm	0.10	0.28

TAB. 6.4 – Comparaison calcul/mesure dans le cas d'irradiation pulsées de 7ns sur des couches métalliques

Un bon accord entre les résultats théoriques et expérimentaux est observé. Cet accord est satisfaisant pour la couche de nickel. Dans le cas de l'or on trouve cependant une différence entre calcul et mesure.

### Conclusions sur le modèle

D'après ces résultats, nous pouvons conclure que pour des irradiations variant de la nanoseconde à la milliseconde le modèle développé reste valide et donne une bonne prédiction. Ceci confirme la justesse des hypothèses de travail dans cette gamme d'impulsions.

## 6.4 Etude morphologique des endommagements sur les matériaux absorbants

Pour affiner l'étude, et mieux appréhender les mécanismes d'endommagements thermiques dans les couches minces métalliques, des études morphologiques ont été effectuées. Pour cela des mesures par microscopie à force atomique ont été réalisées sur des couches de nickel, irradiées avec différentes durées d'impulsions.

### 6.4.1 Durées d'impulsions de 1s à $10^{-4}$ s

Nous présentons ici les mesures réalisées en utilisant la source YAG continue, avec des durées d'irradiations contrôlées par l'obturateur électronique (quelques

secondes à 1/8000 de seconde). Les échantillons irradiés sont des couches de nickel, d'épaisseur  $1\mu m$  et 200nm déposées sur un substrat de silice.

### Couche d'épaisseur 1micron

Sur cette couche deux séries de mesures ont été effectuées : une première série est effectuée en faisant varier le temps d'irradiation à densité de puissance constante, la deuxième série concerne des tirs de durée constante, effectués à des énergies différentes.

Dans le cas des mesures à énergie constante, l'énergie est fixée à  $1,6 \cdot 10^4 W/cm^2$ . Les résultats sont présentés dans le tableau 6.5.

Pour la deuxième série de mesures, le temps d'irradiation est fixé à 3s. Les résultats de tirs avec différentes énergies sont similaires à ceux observés précédemment, les mesures sont reportées en annexe F.

### Couche d'épaisseur 200nm

Dans ce cas les mesures ont été effectuées à énergie constante ( $8,3 \cdot 10^3 W/cm^2$ ). Les résultats sont présentés dans le tableau 6.6.

### Analyse des résultats

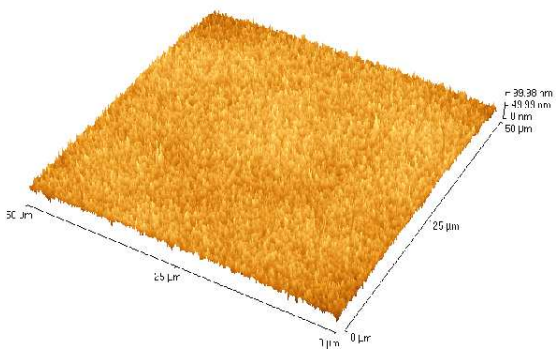
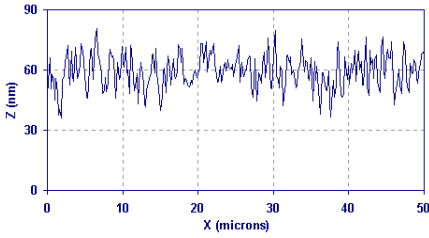
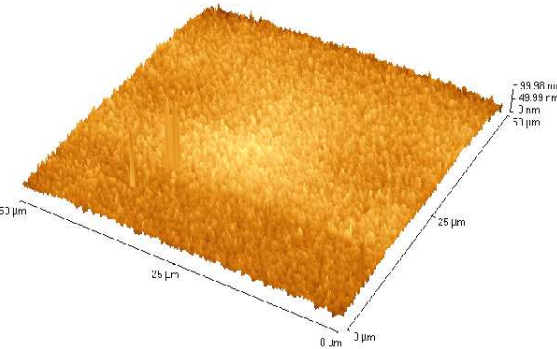
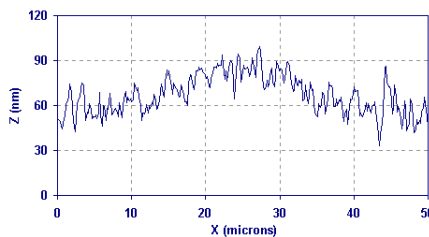
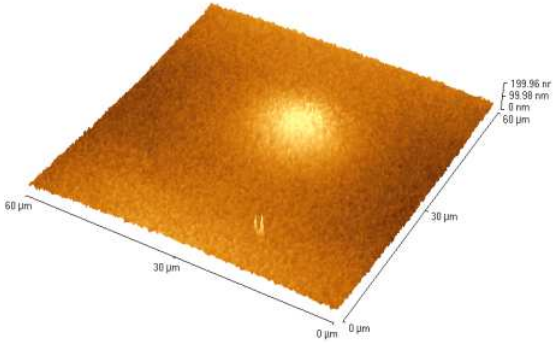
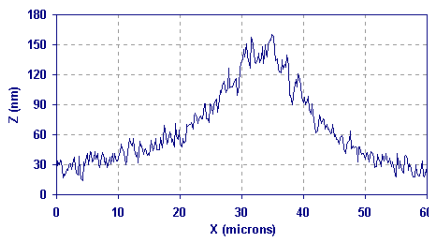
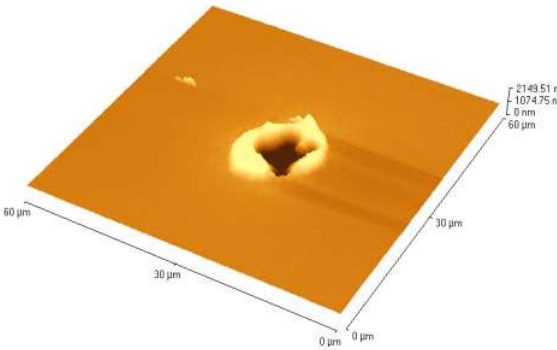
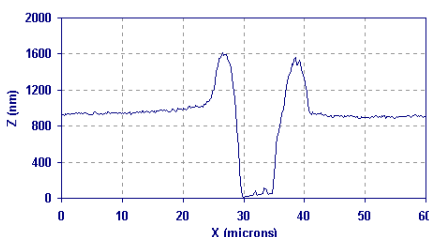
Dans les deux cas que nous venons de présenter, nous observons la formation continue d'un dôme (qui finit par éclater) dont la taille augmente avec l'énergie incidente ou le temps d'irradiation. Ce type de comportement semble montrer que les températures atteintes sont proches du point de fusion du matériau. En effet, le dôme observé à l'AFM peut être aisément interprété comme un décollement et un soulèvement de la couche par rapport au substrat, dû à l'échauffement dans toute la profondeur de la couche. Ceci est conforme aux prédictions théoriques qui montrent que dans les conditions de tir et sur ce matériau, les températures atteintes à l'interface air/couche et à l'interface couche/substrat sont très voisines (calcul présenté figure 6.20).

Dans le cas de la couche de 200nm, il apparaît un effet particulier de bosses secondaires sur les bords du dôme principal. Cet effet ne semble pas être dû à un dysfonctionnement du laser, les tirs étant effectués dans la continuité des tirs sur la couche de 1 micron d'épaisseur. On peut expliquer ce phénomène par des remontées de matière sur les bords, du fait de la présence d'une interface.

## 6.4.2 Impulsions nanosecondes

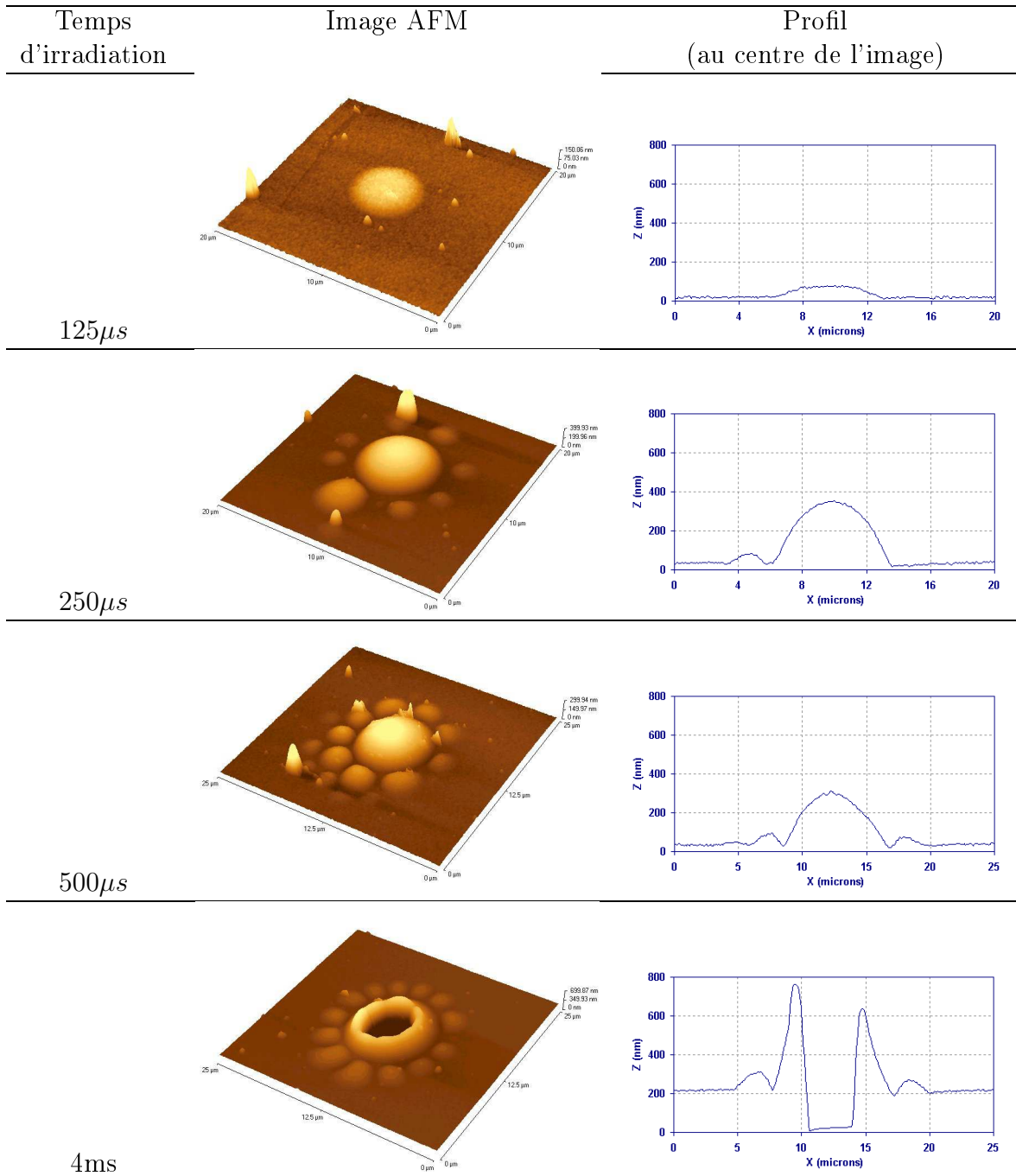
Une étude morphologique similaire a été effectuée en régime nanoseconde, sur deux épaisseurs de métal différentes : 200nm et 1 micron. Nous reportons dans

CHAPITRE 6. EFFETS THERMIQUES DANS LES MATERIAUX  
 ABSORBANTS : DEVELOPPEMENT D'OUTILS THEORIQUES ET  
 EXPERIMENTAUX

Temps d'irradiation	Image AFM	Profil (au centre de l'image)
125 $\mu$ s		
500 $\mu$ s		
1ms		
2ms		

TAB. 6.5 – Résultats de tirs à  $1,6 \cdot 10^4 \text{ W/cm}^2$  sur une couche de nickel d'épaisseur  $1 \mu\text{m}$ , avec différents temps d'irradiation.

6.4. ETUDE MORPHOLOGIQUE DES ENDOMMAGEMENTS SUR LES MATÉRIAUX ABSORBANTS



TAB. 6.6 – Résultats de tirs à  $8,3 \cdot 10^3 W/cm^2$  sur une couche de nickel d'épaisseur 200nm, avec différents temps d'irradiation.

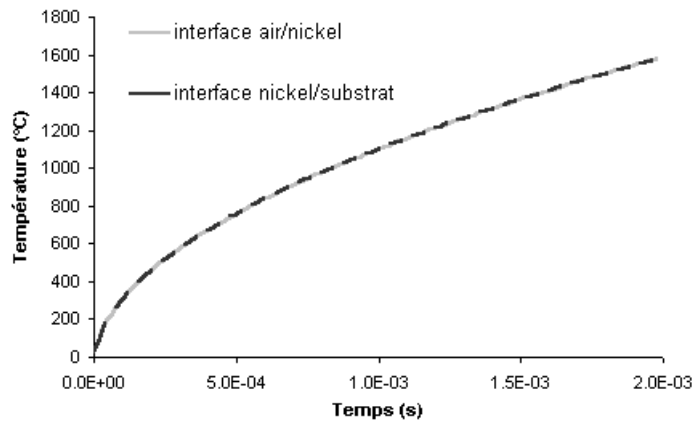


FIG. 6.20 – Elévations de température en surface et à l'interface métal/substrat, pour une couche de nickel d'épaisseur 1000nm, irradiée avec une densité de puissance de  $10^4 \text{ W/cm}^2$  à 1064nm, pendant 1ms

les tableaux 6.7 et 6.8 les résultats de ces mesures.

### Analyse des résultats

Dans le cas de la couche la plus fine (200nm), les morphologies d'endommagement observées (formation d'une bulle et éclatement) sont similaires au cas d'irradiations avec des durées d'impulsions de la seconde ou de la milliseconde. Par contre dans le cas d'une couche épaisse (micronique) le comportement est totalement différent : la couche est modifiée seulement sur la surface. Ce comportement ne correspondrait pas à une ablation de la surface, puisque l'on ne retrouve pas la forme du faisceau Gaussien, mais à une fusion du matériau. En effet, en considérant les calculs présentés figure 6.21, les températures atteintes en surface et à 200nm, dans nos conditions de tir, sont voisines. Nous retrouvons alors les comportements expliqués dans la partie précédente. Par contre la différence de température entre la surface et une profondeur de 1000 nm est notable, dans ce cas l'échauffement ne se fait plus sur toute l'épaisseur de la couche, et nous n'observons plus de décollement de la couche mais une fusion partielle sur la surface.

### 6.4.3 Conclusion de l'étude morphologique

Différents types d'endommagement ont été observés par microscopie à force atomique sur des couches de nickel de différentes épaisseurs, irradiées avec des durées d'impulsions variant de la seconde à la nanoseconde. Grâce au modèle décrit dans la partie 6.2, les différents types de morphologies ont pu être expliqués, notamment au niveau des effets de l'interface. Ces descriptions qualitatives étant valables pour des durées d'impulsions variant de la nanoseconde à la milliseconde.

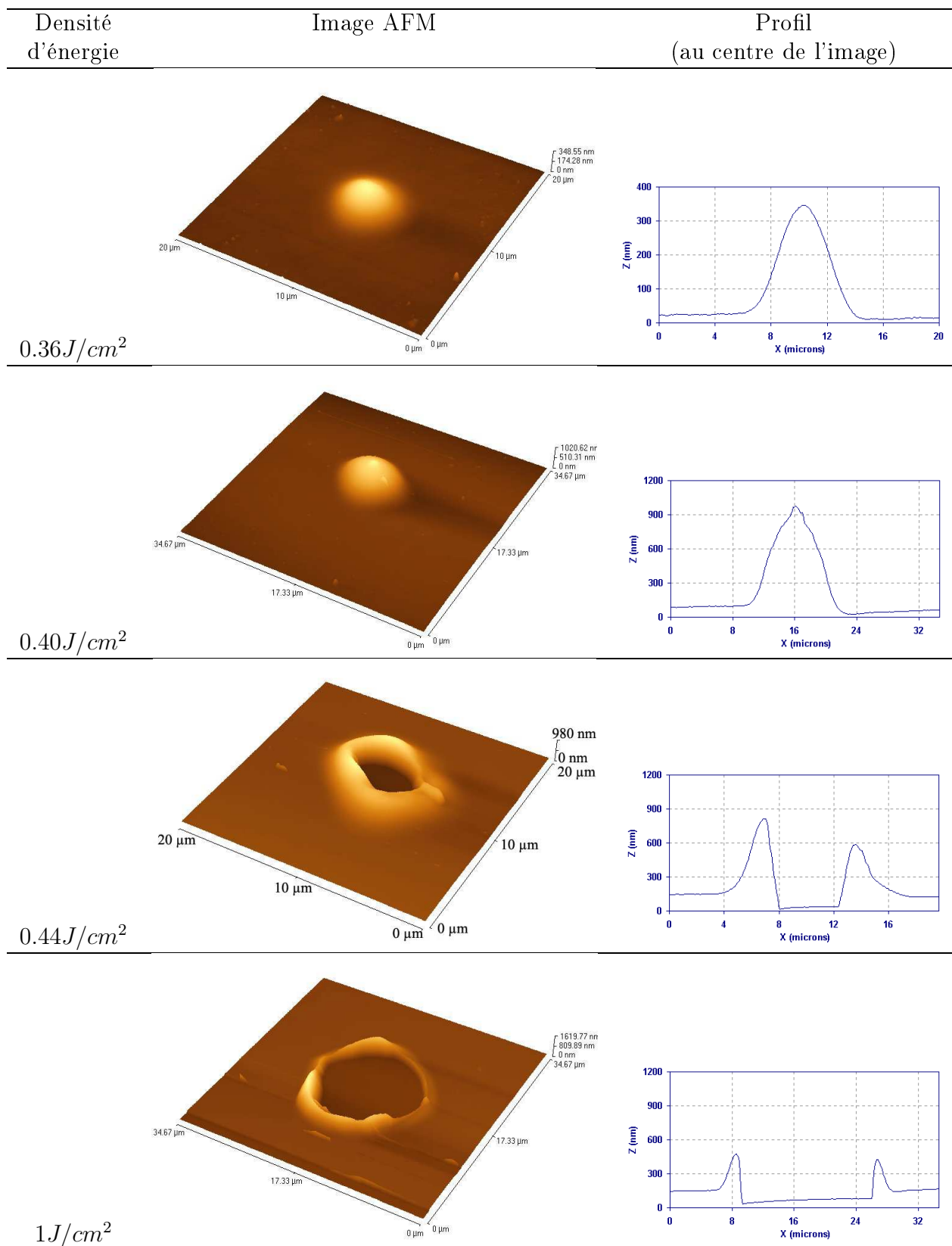
6.4. ETUDE MORPHOLOGIQUE DES ENDOMMAGEMENTS SUR LES MATÉRIAUX ABSORBANTS

Densité d'énergie	Image AFM	Profil (au centre de l'image)
$0.4 J/cm^2$		
$0.6 J/cm^2$		
$1 J/cm^2$		
$1.4 J/cm^2$		

TAB. 6.7 – Résultats de tirs de 7ns, réalisés sur une couche de nickel d'épaisseur  $1\mu m$ , avec différentes énergies.



CHAPITRE 6. EFFETS THERMIQUES DANS LES MATERIAUX  
 ABSORBANTS : DEVELOPPEMENT D'OUTILS THEORIQUES ET  
 EXPERIMENTAUX



TAB. 6.8 – Résultats de tirs de 7ns, réalisés sur une couche de nickel d'épaisseur 200nm, avec différentes énergies. 162

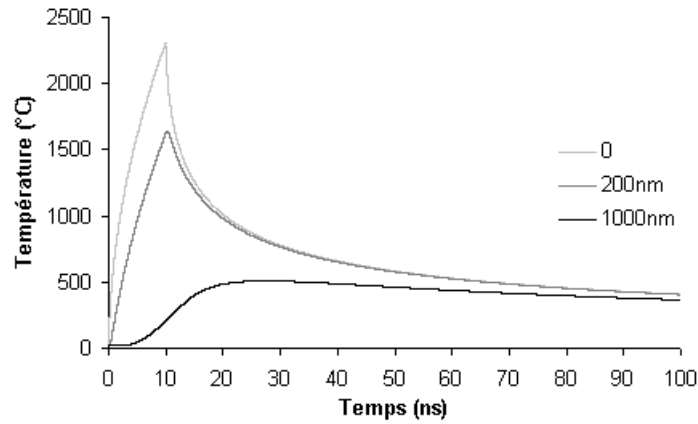


FIG. 6.21 – Elévations de température en surface et en profondeur dans du nickel irradié avec une densité de puissance de  $40\text{MW}/\text{cm}^2$  à  $1064\text{nm}$ , pendant  $10\text{ns}$  (soit  $0.4\text{J}/\text{cm}^2$ )

## 6.5 Conclusion

Nous avons mis en place une modélisation thermique simple permettant de calculer les élévations de température dans un matériau semi-infini ou une couche mince absorbante, soumis à une irradiation laser pulsée.

Grâce à une étude paramétrique menée sur des échantillons de nickel et d'or, la validité et la justesse du modèle a été démontrée pour une gamme d'impulsions variant de la nanoseconde à la milliseconde.

Une étude morphologique sur ces couches absorbantes a également été menée. Grâce au modèle développé, les différents types de morphologies ont pu être expliqués pour des gammes d'impulsions de la nanoseconde à la milliseconde, notamment par des effets de l'interface.

La prochaine étape est maintenant d'étendre ces calculs à des empilements métal/diélectrique. La modélisation permettrait alors d'optimiser la conception des composants pour augmenter les seuils d'endommagement.

*CHAPITRE 6. EFFETS THERMIQUES DANS LES MATERIAUX  
ABSORBANTS : DEVELOPPEMENT D'OUTILS THEORIQUES ET  
EXPERIMENTAUX*

---

# CONCLUSION ET PERSPECTIVES

L'objectif de cette thèse était d'analyser les phénomènes d'endommagement laser en régime nanoseconde, en se focalisant sur le cas des verres, dont la dégradation sous fort flux photonique constitue un point bloquant pour la réalisation et l'avancée de nombreuses applications. Cette étude a été réalisée dans le but de déterminer les processus physiques mis en jeu lors de l'interaction laser/matériaux optiques du proche infra-rouge (1064nm) à l'ultraviolet (355nm) en développant des outils théoriques et expérimentaux.

Pour cela nous avons dû tout d'abord améliorer le banc de tenue au flux existant pour le doter d'une métrologie très développée et d'un système de contrôle des paramètres de tirs rigoureux, afin de tendre vers une mesure "absolue" du seuil d'endommagement. L'ensemble des améliorations apportées nous a permis d'obtenir un dispositif automatique, souple, et rapide. Ceci a rendu possible le tracé de courbes de probabilités d'endommagement, pour caractériser finement différents types verres à 1064nm et 355nm, que ce soit en tirs uniques ou répétés.

Les résultats obtenus ont pu être interprétés grâce à l'utilisation d'un modèle, basé sur l'hypothèse de nano-centres initiateurs de l'endommagement laser. Ce modèle a été adapté à notre étude pour permettre d'analyser le cas des surfaces, des volumes ou des couches minces. Après avoir validé ce modèle, par l'étude de liquides calibrés, nous avons pu concrétiser le concept de nano-centres, initiateurs de l'endommagement laser dans les verres.

Les densités de défauts dans le volume des verres ont été estimées à quelques dizaines de défauts par  $100\mu m^3$ , et nous avons montré qu'elles étaient voisines à 1064nm et 355nm. En ajoutant à cela le fait que les morphologies d'endommagement observées à ces deux longueurs d'onde sont similaires, nous pouvons penser que les mécanismes d'endommagement laser sont similaires du proche infra-rouge au proche ultraviolet, aussi bien en surface qu'en volume. D'autre part, une étude de la tenue au flux lors de tirs répétés dans ces matériaux, a démontré que la diminution du seuil d'endommagement avec le nombre de tirs, pouvait être attribuée au même type de défauts que ceux provoquant l'endommagement lors de tirs

uniques. Ces défauts évolueraient lors de tirs répétés sous seuil, pour atteindre un état permettant d'initier un endommagement du même type que lors d'un tir unique.

Dans le cas des surfaces, les mesures de seuil d'endommagement effectuées nous ont permis de montrer que les défauts initiateurs sont de nature différente de ceux de volume, et sont liés aux procédés de polissage. Ces défauts pouvant être des inclusions absorbantes, des craquelures ou des rayures sous la surface du verre. L'analyse morphologique des endommagements nous permet d'estimer la profondeur d'enfouissement de ces défauts à une centaine de nanomètres. Dans ces conditions, un ordre de grandeur de la densité de ces défauts, obtenu par l'ajustement des courbes expérimentales, est alors de 1 défauts/ $\mu\text{m}^3$ .

Enfin, dans le cas des couches minces optiques, une analyse similaire a révélé une densité de défauts de l'ordre de 10 défauts ( $\text{par } 100\mu\text{m}$ )<sup>2</sup>. Ces valeurs sont confirmées par les profils AFM des zones endommagées.

Pour aller plus loin dans notre investigation des courbes de seuil, des expériences complémentaires ont été menées :

- D'une part, nous avons mesuré le claquage électrostatique des composants pour en extraire une courbe de seuil analogue aux mesures optiques. Les champs électrostatiques de claquage ainsi trouvés sont assez proches des valeurs de champ électromagnétique de claquage. Ces travaux sont actuellement poursuivis.
- D'autre part, nous avons étudié des échantillons contenant des sites initiateurs artificiels d'endommagement, simulant des inclusions de particules métalliques dans une matrice de silice. Les seuils mesurés viennent confirmer le bien-fondé de nos hypothèses sur les nanocentres. Ces travaux prometteurs sont également poursuivis en collaboration étroite avec le CEA.

Après avoir extrait les seuils et densités de sites initiateurs, nous avons mis en place une modélisation thermique complète pour prédire les élévations de température dans ces sites. Dans l'hypothèse d'un endommagement lié à la température de fusion, ces travaux nous ont permis d'estimer la taille des sites précurseurs en fonction de leur indice imaginaire, ce qui constitue un résultat majeur. Ce résultat nous a ensuite permis de quantifier la détectivité des méthodes photothermiques pour déceler ces nano-défauts. Les conclusions sont encourageantes et des montages spécifiques sont en cours d'initiation au laboratoire.

Par ailleurs, nous avons utilisé la modélisation pour prédire les temps de fonctionnement des composants de type absorbeurs de lumière soumis à un éclairage continu. Un accord remarquable entre la théorie et l'expérience a été mis en évidence, et nous permet d'utiliser à bon escient ce type de composants métalliques.

De façon plus générale, cette deuxième thèse sur l'endommagement laser au

laboratoire nous aura permis de rejoindre sans complexe la communauté internationale des spécialistes du domaine. Notre banc de métrologie, désormais robuste, permettra sans doute de délivrer dans un avenir proche, des certificats de garantie à la tenue au flux des composants (verres, cristaux, filtres. . .). Quant à l'interprétation des phénomènes, nous avons également bon espoir d'avancer rapidement sur la détermination de la taille des sites initiateurs, qui devrait nous aider à mettre en œuvre les méthodes de détection non destructrices, qui sont une clé pour l'amélioration de la fabrication des composants. Précisons pour terminer que, dans ce contexte, une importante plateforme " photonique de puissance " est attendue au laboratoire pour le début 2003.

## CONCLUSION ET PERSPECTIVES

---

# Annexe A

## Caractéristiques des verres de silice Herasil et Suprasil

### A.1 Herasil (quartz fondu) et Suprasil (silice synthétique)

#### A.1.1 Propriétés mécaniques et thermiques

Technical properties	Suprasil	Homosil/Herasil/ Infrasil/HQO
<b>Mechanical data</b>		
Density g/cm <sup>3</sup>	2.201	2.203
Mohs hardness	5.5...6.5	
Micro hardness N/mm <sup>2</sup>	8600...9800	
Knoop hardness N/mm <sup>2</sup>	5800...6200	
Modulus of elasticity (at 20°C) N/mm <sup>2</sup>	7.0 · 10 <sup>4</sup>	7.25 · 10 <sup>4</sup>
Modulus of torsion N/mm <sup>2</sup>	3 · 10 <sup>4</sup>	3.1 · 10 <sup>4</sup>
Poisson's ratio	0.17	0.17
Compressive strength N/mm <sup>2</sup>	1150	1150
Tensile strength N/mm <sup>2</sup>	50	50
Bending strength N/mm <sup>2</sup>	67	67
Torsional strength N/mm <sup>2</sup>	30	30
Sound velocity m/s	5720	5720
<b>Thermal data</b>		
Softening temperature °C	1600	1730
Annealing temperature °C	1120	1180
Strain temperature °C	1025	1075
Max. working temperature °C		
continuous	950	1150
short-term	1200	1300
Mean specific heat J/kg · K	772	
0...100°C	964	
0...500°C	1052	
Heat conductivity W/m · K		
20°C	1.38	
100°C	1.46	
200°C	1.55	
300°C	1.67	
400°C	1.84	
950°C	2.68	
Mean expansion coefficient K <sup>-1</sup>	5.1 · 10 <sup>-7</sup>	
0...100°C	5.8 · 10 <sup>-7</sup>	
0...200°C	5.9 · 10 <sup>-7</sup>	
0...300°C	5.4 · 10 <sup>-7</sup>	
0...600°C	4.8 · 10 <sup>-7</sup>	
0...900°C	2.7 · 10 <sup>-7</sup>	
-50...0°C	0	
0...-160°C	0	

Electrical data of quartz glass		
Resistivity in Ω · m		
20°C	10 <sup>16</sup>	
400°C	10 <sup>8</sup>	
800°C	6.3 · 10 <sup>4</sup>	
1200°C	1.3 · 10 <sup>3</sup>	
Dielectric strength in kV/mm (sample thickness ≅ 5 mm)		
20°C	25...40	
500°C	4...5	
Dielectric loss angle (tg δ)		
1 kHz	0.0005	
1...1000 MHz	0.0001	
3 · 10 <sup>4</sup> MHz	0.0004	
Dielectric constant (ε)		
20°C	0...1 MHz	3.70
23°C	9 · 10 <sup>2</sup> MHz	3.77
23°C	3 · 10 <sup>4</sup> MHz	3.81

Typical trace impurities in quartz glass		
Impurity	Suprasil ppm (µg/g)	Homosil/Herasil/ Infrasil/HQO ppm (µg/g)
Al	0.05	20
Ca	0.05	1
Cr	0.005	0.1
Cu	0.01	0.1
Fe	0.02	0.8
K	0.01	0.8
Li	0.01	1
Mg	0.005	0.1
Na	0.05	1
Ti	0.05	1

FIG. A.1 – Propriétés mécaniques et thermiques des verres de Suprasil et d'Herasil



### A.1.2 Courbes de transmission

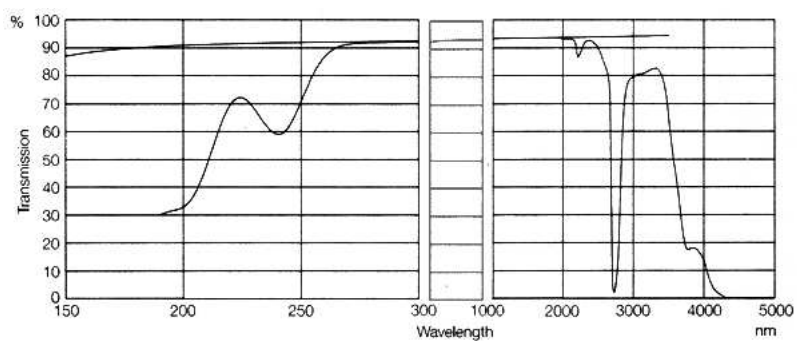


FIG. A.2 – Courbe de transmission de l’Herasil (source : Heraeus)

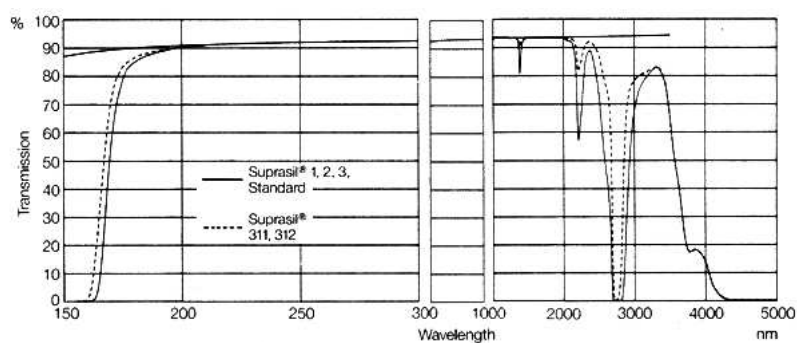


FIG. A.3 – Courbe de transmission du Suprasil (source : Heraeus)

### A.1.3 Défauts et impuretés quantifiées par le fabricant

figure A.4

- 1 Bubbles or inclusions ≤ 0.08 mm diameter are not counted.
- 2 With non-circular bubbles the diameter is averaged.
- 3 Layers are nearly flat, colorless striae. They are detected by the shadowgraph method. In the table below, quartz glass grades with striae are highlighted in grey. Those with the grey highlight may contain layers, but since their position is 90° to the functional direction, they are insignificant.
- 4 The Δn value is the maximum permissible by the interferometer at 632.8 nm over 90% of the diameter or edge length of a fine ground piece, measured over the entire surface of the test diameter is 150 mm. Bigger piece are measured overlapping interferograms. The PV (Peak-to-Valley) value is the maximum Δn within the tested area.
- 5 3D material, optically isotropic. In quartz glass, the homogeneity is typically specified in one direction only. Heraeus manufactures quartz glass products with homogeneity specified in all 3 directions regarding striae, layers and homogeneity. These materials, specified for the most demanding applications, are highlighted in blue.
- 6 Striae grade MALC 174 B
- 7 Layers
- 8 PV
- 9 Homogeneity
- 10 PV By special request
- 11 Granularity
- 12 In the center
- 13 At the edges
- 14 Residual Strain
- 15 OH Content
- 16 Standard production (larger sizes available on request)
- 17 Maximum Size

1	2	3	Bubbles and Inclusions 1, 2			5	6	7	Homogeneity		10	11	Residual Strain 13		14	15	Maximum Size	
			4	4	4				8	9			12	13			16	17
SUPRASIL® 1	0	≤ 0.03	0.15/≤ 6 0.25/6-30	0	0	A	none	≤ 2 · 10 <sup>-6</sup>	≤ 2 · 10 <sup>-6</sup>	≤ 2 · 10 <sup>-6</sup>	none	≤ 5	5...15	free	≤ 1000	6	300	
SUPRASIL® 2	0	≤ 0.03	0.15/≤ 6 0.25/6-30	0	0	A	none	≤ 2 · 10 <sup>-6</sup>	≤ 5 · 10 <sup>-6</sup>	≤ 1 · 10 <sup>-6</sup>	none	≤ 5	5...15	free	≤ 1000	80	690	
SUPRASIL® 3	0	≤ 0.03	0.15/≤ 6 0.25/6-30	0	0	A	none	≤ 10 · 10 <sup>-6</sup>	≤ 5 · 10 <sup>-6</sup>	—	none	≤ 5	5...15	free	≤ 1000	80	690	
SUPRASIL® Standard	0	≤ 0.03	0.15/≤ 25	0	0	A	none	n.sp.	n.sp.	—	none	≤ 10	10...15	free	≤ 1000	25	125 +/- 5	
SUPRASIL® 311	0	≤ 0.03	0.15/≤ 6	0	0	A	none	≤ 3 · 10 <sup>-6</sup>	≤ 1 · 10 <sup>-6</sup>	≤ 1 · 10 <sup>-6</sup>	none	≤ 5	5...15	free	≈ 200	6	300	
SUPRASIL® 312	0	≤ 0.03	0.15/≤ 6 0.25/6-30	0	0	A	none	≤ 4 · 10 <sup>-6</sup>	≤ 2 · 10 <sup>-6</sup>	≤ 1 · 10 <sup>-6</sup>	none	≤ 5	5...15	free	≈ 200	50	690	
SUPRASIL® 300	0	≤ 0.03	0.2/≤ 6	0	0	n.sp.	n.sp.	n.sp.	n.sp.	—	none	≤ 5	5...15	slight blue	≤ 1	50	690	
HOMOSIL®	0	≤ 0.03	0.1/≤ 6	0	0	A	none	≤ 3 · 10 <sup>-6</sup>	≤ 2 · 10 <sup>-6</sup>	≤ 1 · 10 <sup>-6</sup>	none	≤ 5	5...15	blue-violet	≈ 150	6	300	
HERASIL® 1	0	≤ 0.03	0.2/≤ 6 0.5/6-30	0	0	A	none	≤ 4 · 10 <sup>-6</sup>	≤ 2 · 10 <sup>-6</sup>	≤ 1 · 10 <sup>-6</sup>	none	≤ 5	5...15	blue-violet	≈ 150	80	690	
HERASIL® 2	0...1	≤ 0.1	0.3/≤ 6 0.6/6-30	0	0	A	none	≤ 6 · 10 <sup>-6</sup>	≤ 3 · 10 <sup>-6</sup>	—	none	≤ 5	5...15	blue-violet	≈ 150	80	690	
HERASIL® 3	2...3	≤ 0.4	0.5/≤ 6 1.0/6-30	≤ 0.2	0	B...C	weak layers	≤ 10 · 10 <sup>-6</sup>	n.sp.	—	very slight	≤ 10	10...15	blue-violet	≈ 150	80	690	
INFRASIL® 301	0	≤ 0.03	0.15/≤ 6	0	0	A	none	≤ 5 · 10 <sup>-6</sup>	≤ 4 · 10 <sup>-6</sup>	≤ 2 · 10 <sup>-6</sup>	none	≤ 5	5...15	blue-violet	≤ 8	6	300	
INFRASIL® 302	0...1	≤ 0.06	0.2/≤ 6 0.5/6-30	0	0	A	none	≤ 6 · 10 <sup>-6</sup>	≤ 4 · 10 <sup>-6</sup>	≤ 3 · 10 <sup>-6</sup>	none	≤ 5	5...15	blue-violet	≤ 8	80	690	
INFRASIL® 303	1	≤ 0.1	0.3/≤ 6 0.6/6-30	0	0	A	none	≤ 10 · 10 <sup>-6</sup>	≤ 6 · 10 <sup>-6</sup>	—	none	≤ 10	10...20	blue-violet	≤ 8	80	690	
HOQ 310	2...3	≤ 0.5	0.8/≤ 6 1.0/6-30	0	0	B...C	weak layers	n.sp.	n.sp.	—	very slight	≤ 10	10...20	blue-violet	≈ 30	80	690	

n.s.p. = not specified

FIG. A.4 – Quantification de défauts dans l'Hérasil et le Suprasil (source : Heraeus)

## A.2 Le BK7 (borosilicate)

### A.2.1 Propriétés mécaniques et thermiques

- Densité :  $2,51g/cm^3$
- Module d'Young : 82 GPa
- Coefficient de Poisson : 0,206
- Coefficient d'expansion thermique :  $-30...+70^{\circ}C : 7,1 \times 10^{-6} K^{-1}$  ;  $+20...+300^{\circ}C : 8,3 \times 10^{-6} K^{-1}$
- Capacité calorifique :  $858 J.kg^{-1}.K^{-1}$
- Conductivité thermique :  $1,114 W.m^{-1}.K^{-1}$
- Température de fusion :  $559^{\circ}C$

Source : Schott

### A.2.2 Courbe de transmission

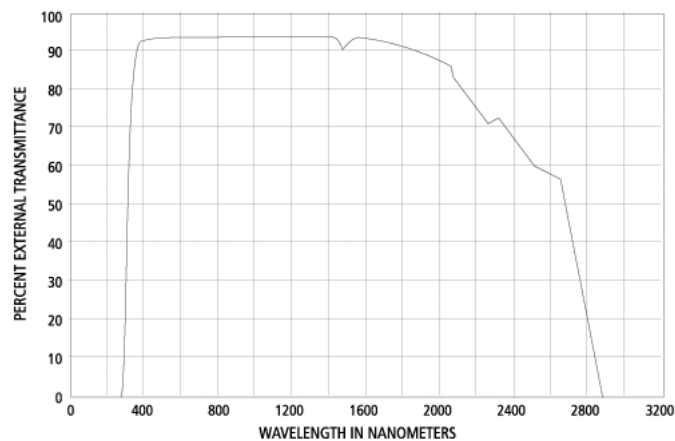


FIG. A.5 – Courbe de transmission d'un verre de BK7 (source : MellesGriot)

# Annexe B

## Caractérisation des lasers

### B.1 Mesures de stabilité en énergie

#### B.1.1 1064nm, laser Quantel $\omega$

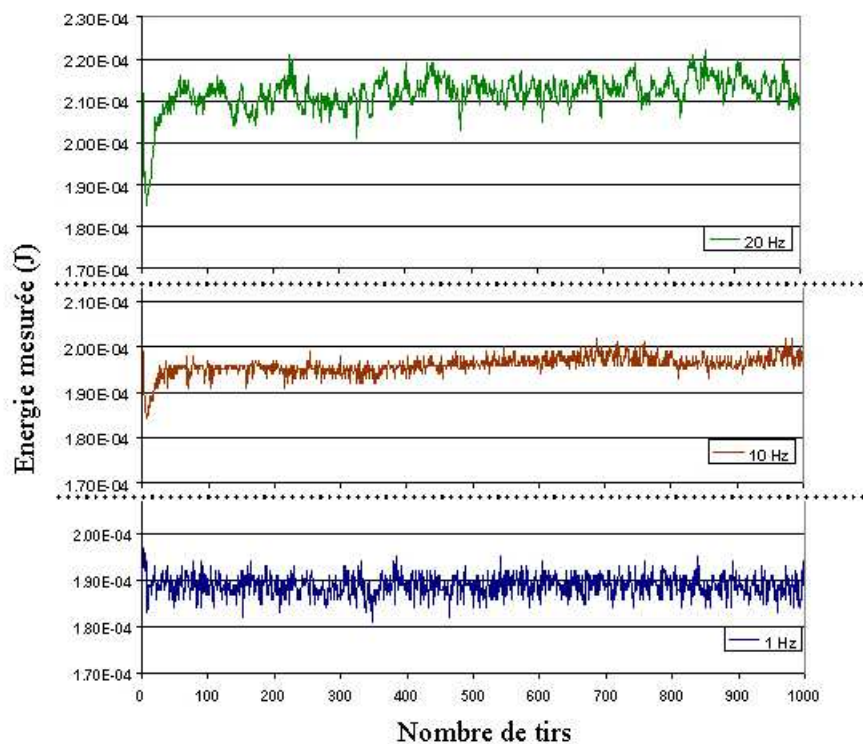


FIG. B.1 – Mesures de stabilité en énergie à 1064nm pour différentes fréquences d'utilisation du laser.

### B.1.2 532nm, laser Quantel $\omega$

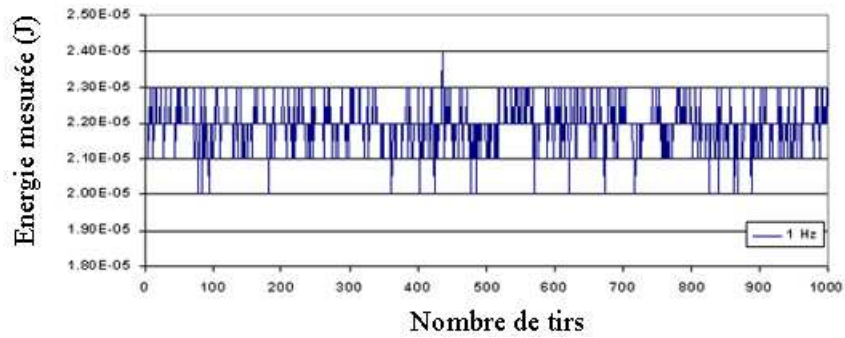


FIG. B.2 – Mesures de stabilité en énergie à 532nm pour une fréquence d'utilisation du laser de 1Hz.

### B.1.3 355nm, laser Quantel $3\omega$

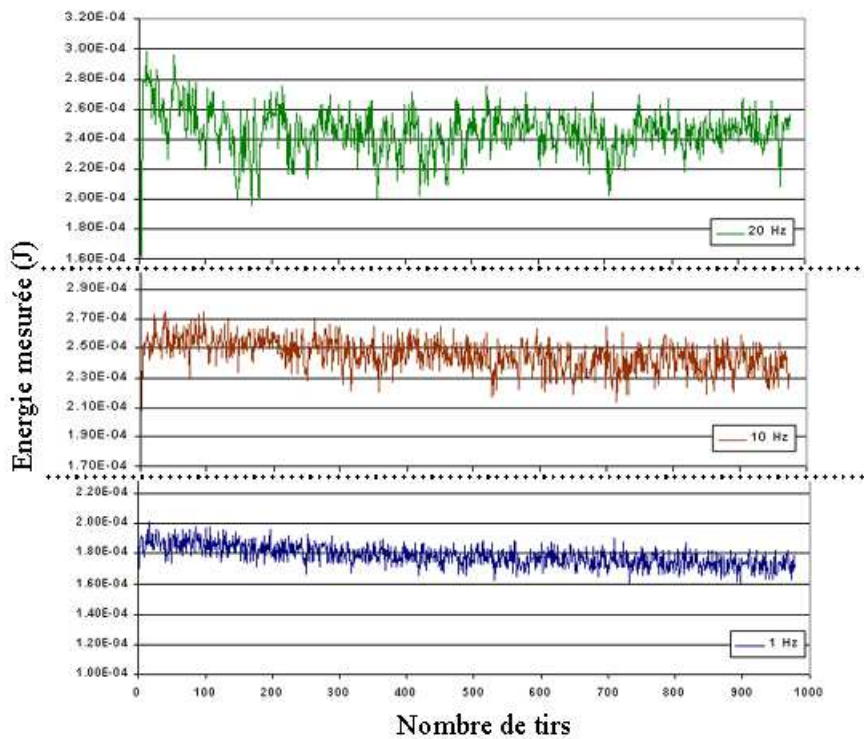


FIG. B.3 – Mesures de stabilité en énergie à 355nm pour différentes fréquences d'utilisation du laser.

## B.2 Mesures du profil temporel

### B.2.1 1064nm, laser Quantel $\omega$

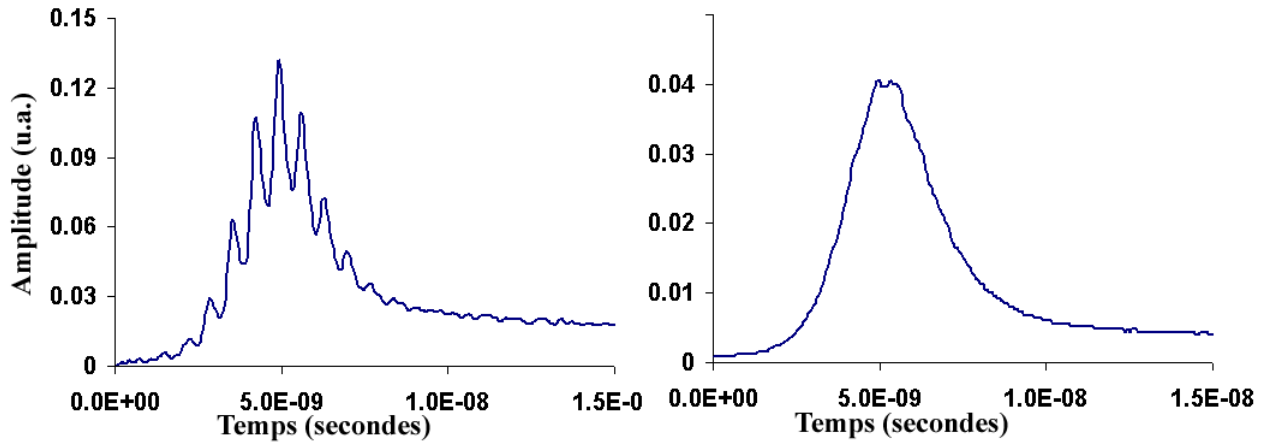


FIG. B.4 – Mesures d'un profil temporel (à gauche) et d'une moyenne sur 100 tirs du profil temporel (à droite), à 1064 nm.

### B.2.2 532nm, laser Quantel $\omega$

Non mesuré

### B.2.3 355nm, laser Quantel $3\omega$

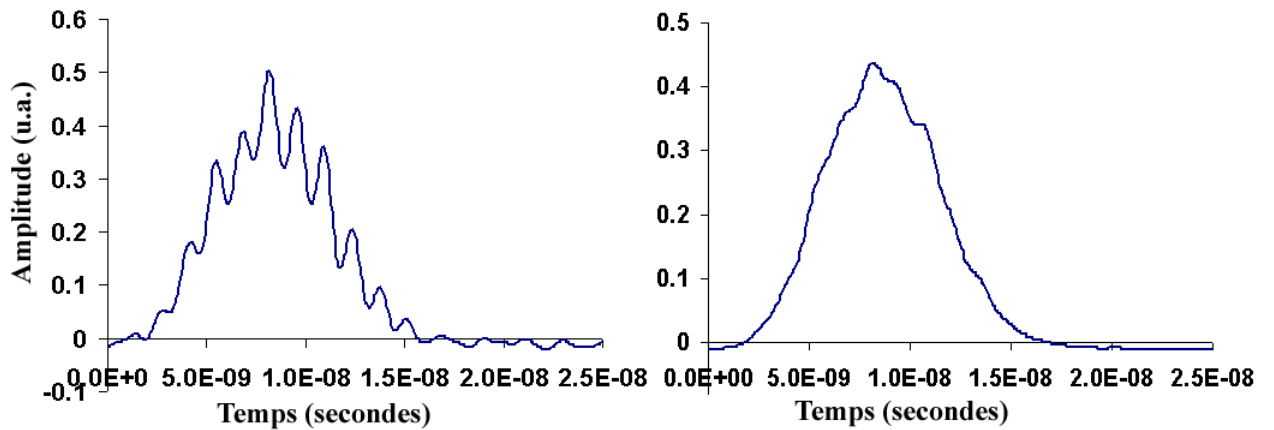


FIG. B.5 – Mesures d'un profil temporel (à gauche) et d'une moyenne sur 100 tirs du profil temporel (à droite), à 355 nm.

## B.3 Mesure de stabilité du waist

### B.3.1 1064nm, laser Quantel $\omega$

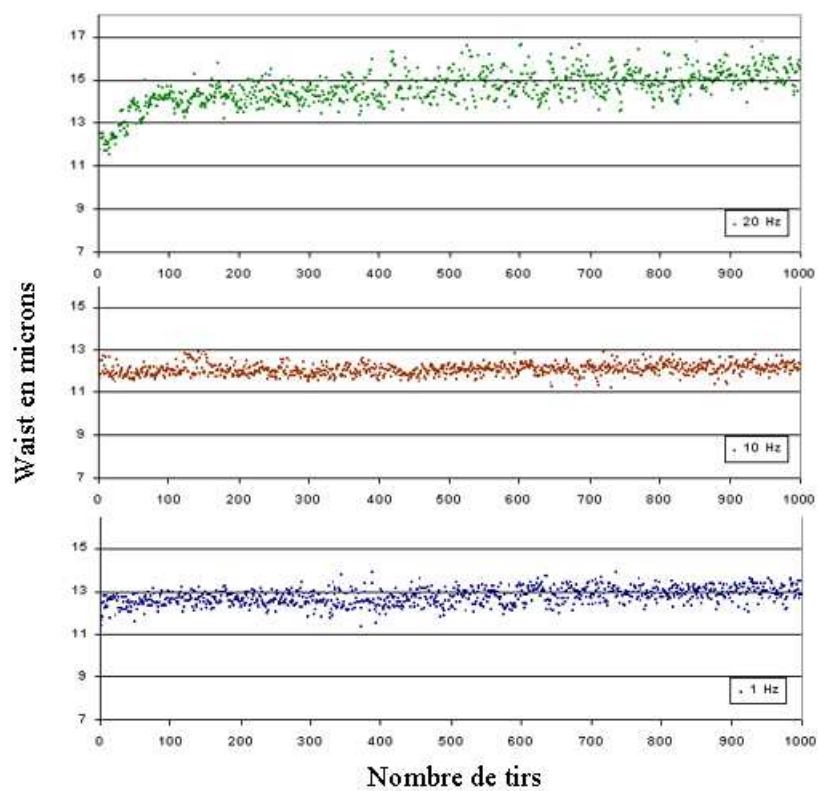


FIG. B.6 – Mesures de stabilité du waist à 1064nm pour différentes fréquences d'utilisation du laser.

B.3.2 532nm, laser Quantel  $\omega$

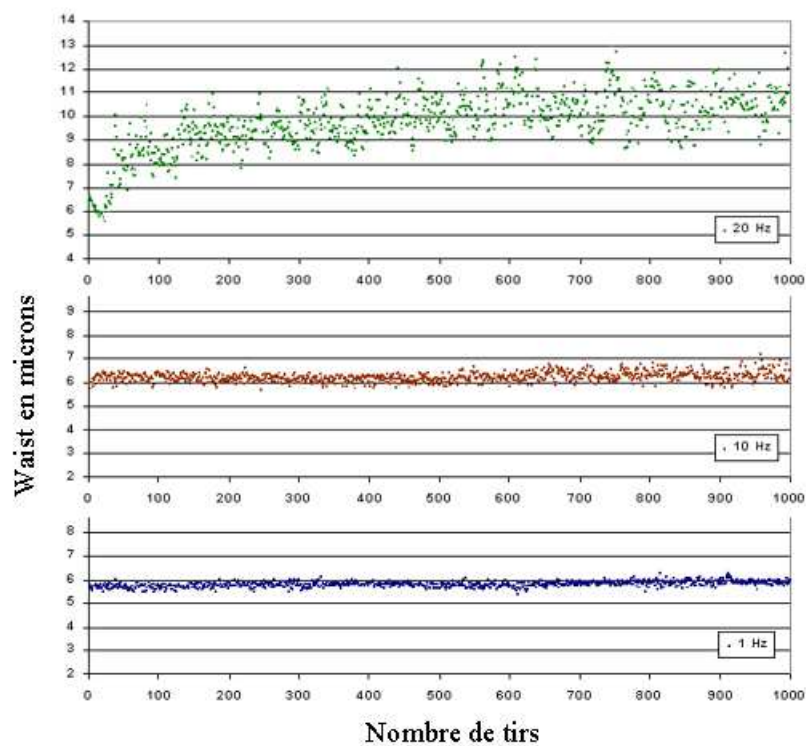


FIG. B.7 – Mesures de stabilité du waist à 532nm pour différentes fréquences d'utilisation du laser.



### B.3.3 355nm, laser Quantel $3\omega$

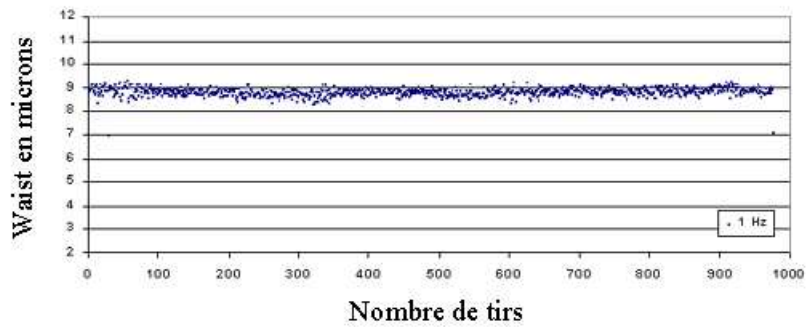


FIG. B.8 – Mesures de stabilité du waist à 355nm pour une fréquence d'utilisation du laser de 1Hz.

## B.4 Mesure de dépointage

### B.4.1 1064nm, laser Quantel $\omega$

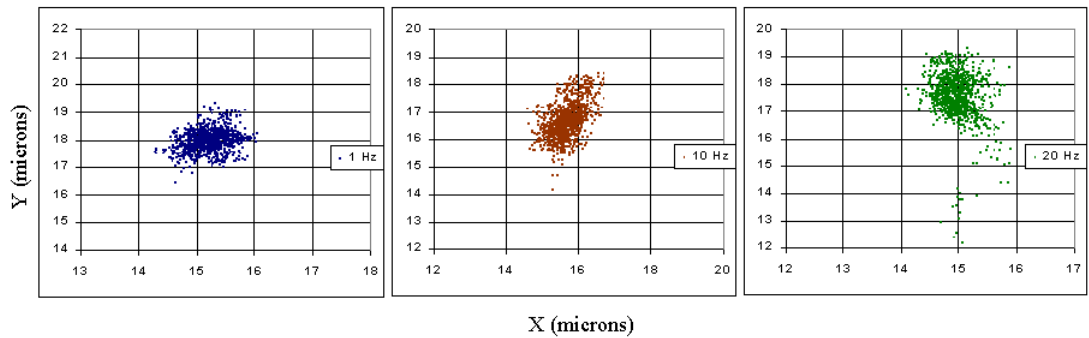


FIG. B.9 – Mesures de dépointage à 1064nm pour différentes fréquences d'utilisation du laser.

### B.4.2 532nm, laser Quantel $\omega$

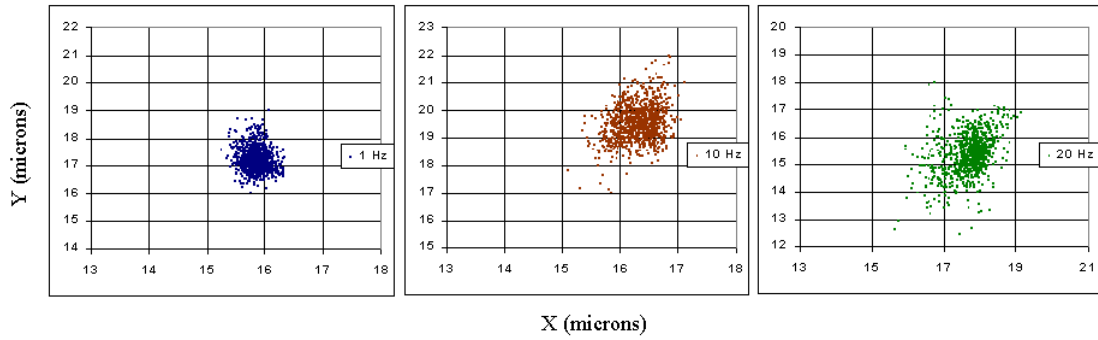


FIG. B.10 – Mesures de dépointage à 532nm pour différentes fréquences d'utilisation du laser.

### B.4.3 355nm, laser Quantel $3\omega$

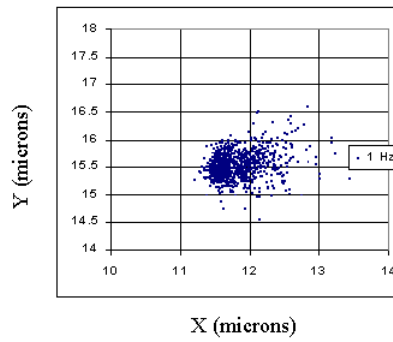


FIG. B.11 – Mesures de dépointage à 355nm pour une fréquence d'utilisation du laser de 1Hz.



# Annexe C

## Courbes de seuil

### C.1 Courbes de seuil des liquides

Toutes les courbes sont mesurées avec 30 points par énergie.

Longueur d'onde : 1064 nm.

Taille du spot :  $25\mu\text{m}$ .

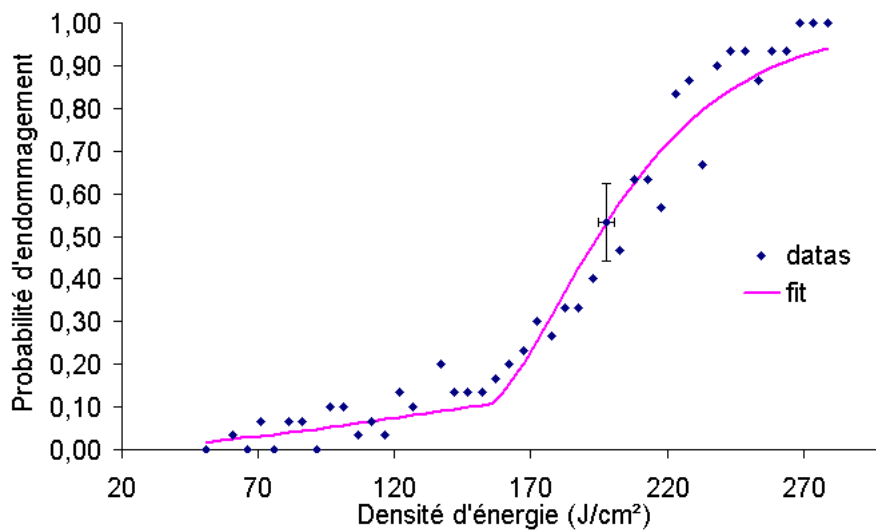


FIG. C.1 – Mélange 2 : 1,4%NP ; 98,6%DI

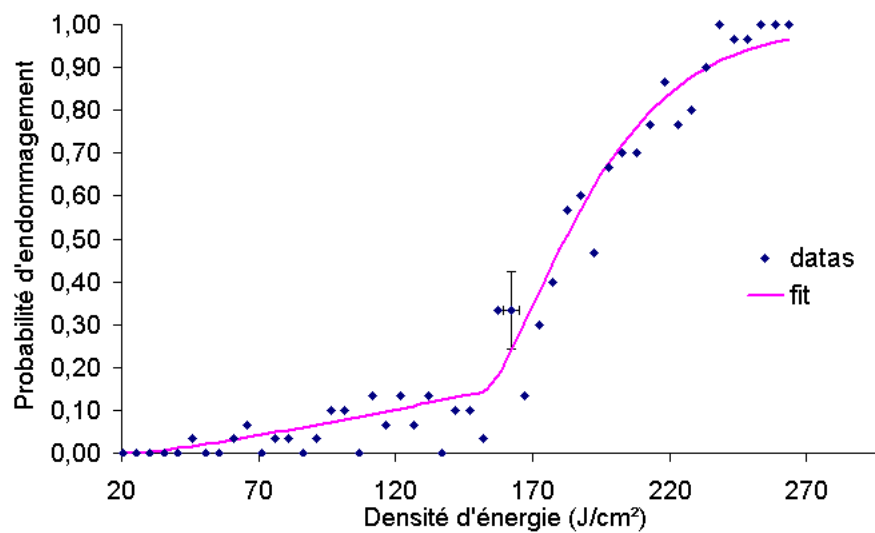


FIG. C.2 – Mélange 3 : 7,1%NP ; 92,9%DI

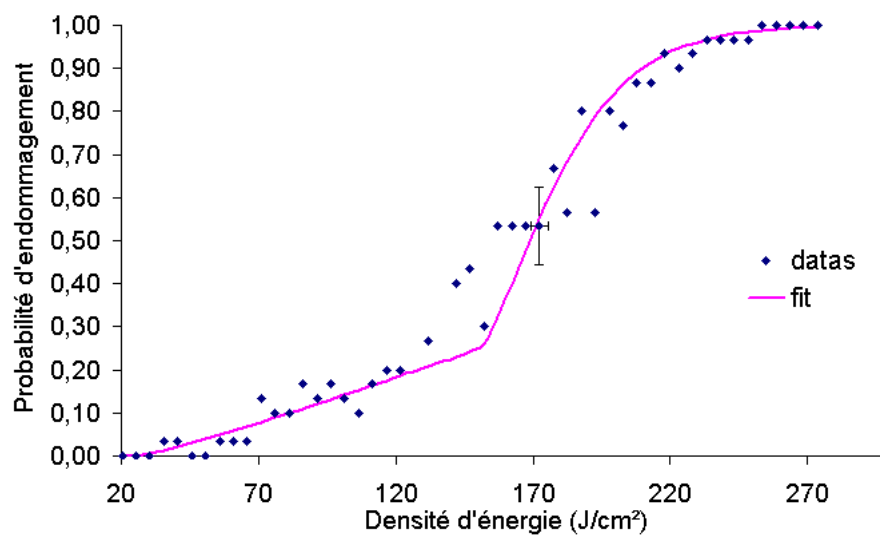


FIG. C.3 – Mélange 4 : 14,3%NP ; 85,7%DI

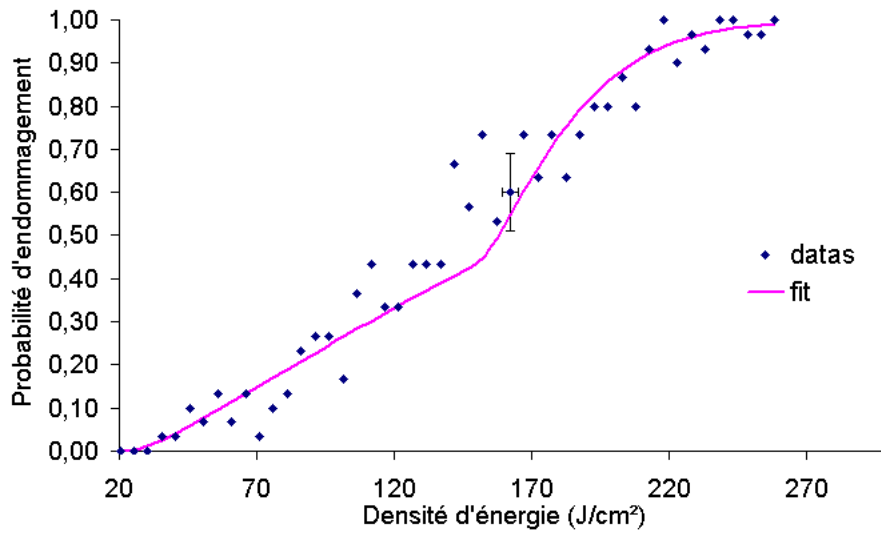


FIG. C.4 – Mélange 5 : 28,6%NP ; 71,4%DI

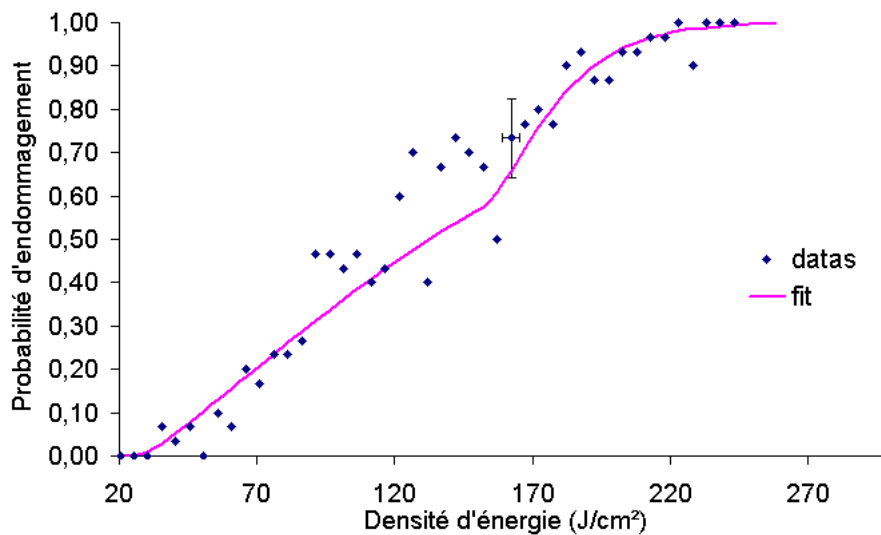


FIG. C.5 – Mélange 6 : 57,1%NP ; 42,9%DI



# Annexe D

## Microscopie à Force Atomique

Le microscope à Force Atomique utilisé à l'Institut Fresnel est un microscope commercial de marque Topometrix (Modèle Accurex/Explorer), il est présenté figure D.1.

Un système de repositionnement entre le banc de tenue au flux et le Microscope à Force Atomique (AFM) nous permet de visualiser, après tir, des zones d'impact laser de quelques dizaines de microns. Il est ainsi possible de déterminer la topographie des sites endommagés, et d'évaluer notamment les quantités de matière ablatées.

Nous présentons dans ce qui suit le principe de fonctionnement de cet appareil ainsi que les artefacts de mesures liés à son utilisation.

### D.1 Principe de fonctionnement

La microscopie à force atomique est une technique de mesure topographique à haute résolution [133]. La surface de l'échantillon est sondée grâce à une pointe de quelques microns de hauteur, située à l'extrémité d'un levier d'une centaine de microns. Les forces répulsives ou attractives qui s'exercent entre la pointe et la surface provoquent une déflexion du levier. Ces effets sont quantifiés grâce à un photodétecteur qui mesure la déflexion d'un laser dirigé sur l'extrémité du levier de la pointe (description figureD.2). Une image d'une pointe que nous avons utilisée est présentée figure D.3.

#### D.1.1 Interaction surface/pointe

Sous vide lorsque la pointe se rapproche de la surface (quelques nanomètres), elle est dans un premier temps soumise à des forces attractives à longues distances : les forces de Van Der Waals. Lorsque la pointe est très proche de la surface ( $<1\text{nm}$ ), les nuages électroniques des atomes se repoussent du fait de forces Coulombiennes. Ces forces répulsives neutralisent les forces attractives puis de-



ANNEXE D. MICROSCOPIE À FORCE ATOMIQUE

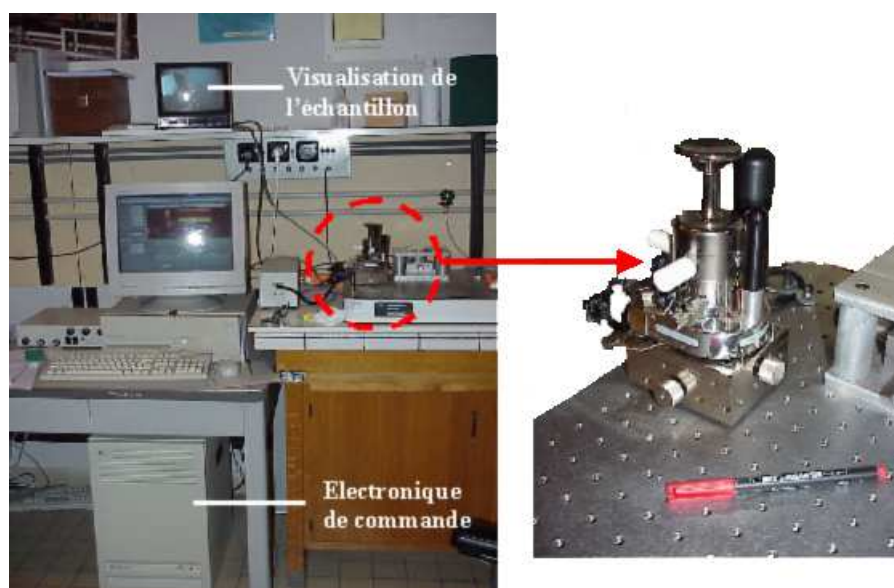


FIG. D.1 – AFM de l'Institut Fresnel

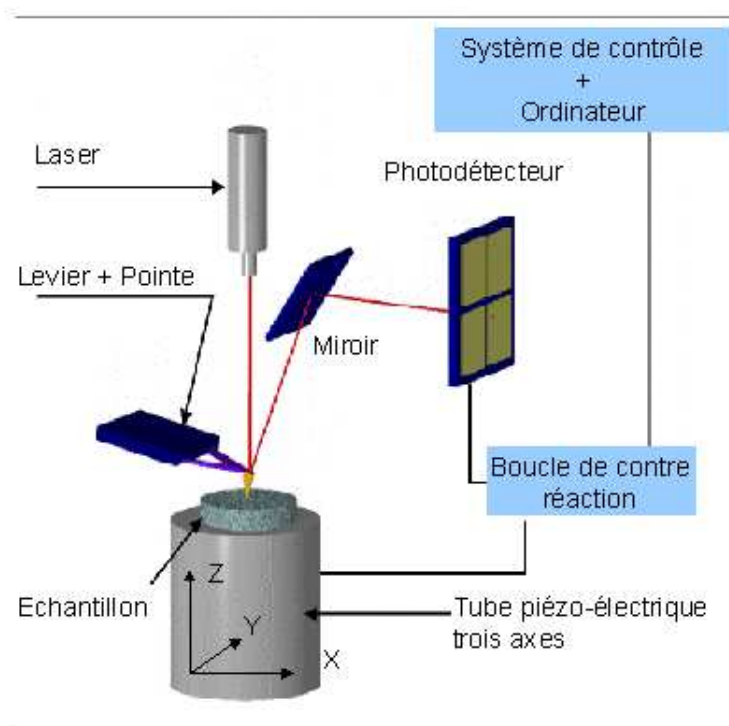


FIG. D.2 – Principe de fonctionnement d'un microscope à force atomique (Le montage du dispositif utilisé diffère légèrement de celui présenté sur cette figure puisque c'est la pointe qui se déplace et non l'échantillon).

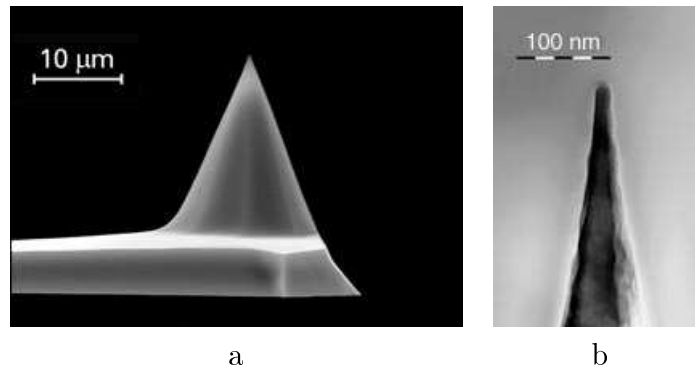


FIG. D.3 – Images par microscopie à balayage d'une pointe AFM

viennent dominantes (figure D.4). Si la mesure est réalisée à l'air, la surface de l'échantillon présente une couche de contamination d'épaisseur variant de 3 à 50 nm. Cette couche est principalement constituée d'eau et de corps contaminants présents dans l'atmosphère. Il faut donc tenir compte dans ce cas de la force de capillarité exercée sur la pointe par ce film. Cette force d'attraction est bien plus grande que celle exercée par les forces de Van Der Waals. L'utilisation d'une pointe très effilée permet de minimiser ces effets.

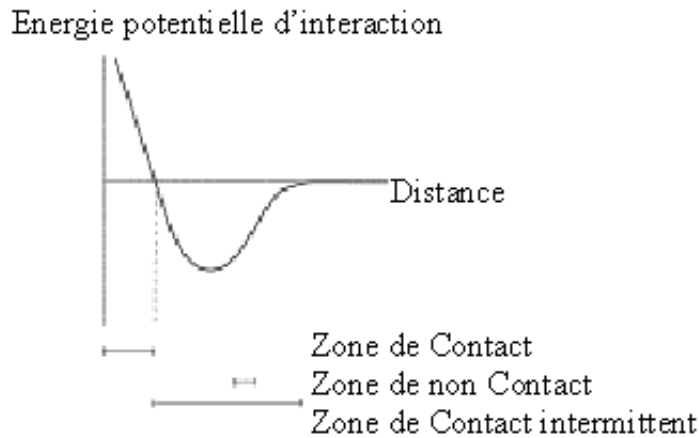


FIG. D.4 – Interaction pointe/surface et les différents modes de fonctionnement associés

### D.1.2 Les différents modes de fonctionnement

Le microscope à Force Atomique utilisé possède trois modes de fonctionnement : le mode contact, le mode non-contact et le mode de contact intermittent correspondant chacun à un point de fonctionnement sur la courbe D.4.

- En mode contact, la pointe est approchée à quelques Angströms de la surface, et les forces d'interactions qui s'exercent sur la pointe sont répulsives. Pour ce mode de fonctionnement, la proximité de la pointe et les forces mises en jeu permettent un réel contact physique avec la surface. Ce contact peut altérer la surface étudiée quand celle-ci est tendre comme dans le cas des polymères. Ce mode de fonctionnement est ainsi réservé à l'étude de matériaux durs. On remarque également que, pour les échantillons mesurés à l'air, la pointe peut pénétrer la couche de contamination et mesurer ainsi la surface sous-jacente.
- En mode non-contact, la pointe est maintenue à plusieurs dizaines d'Angströms de la surface, les forces qui s'exercent sur la pointe sont attractives.
- La dernière configuration est intermédiaire entre le mode contact et non contact. La pointe est mise en résonance avec une grande amplitude (entre 10 et 100nm crête à crête), ce qui lui permet de passer de l'attraction à la répulsion. Ce mode prétend donc, grâce à ce contact intermittent, profiter de la bonne résolution du mode contact, sans l'inconvénient du marquage de la surface lié aux forces de friction. Ce mode permet également, comme le mode contact, de ne pas être affecté par la couche de contamination lors de la mesure à l'air.

Le mode contact, plus facile à mettre en œuvre et mieux adapté à notre étude, est celui qui a été choisi et utilisé pour toutes les mesures qui sont présentées dans ce travail.

## D.2 Résolution des mesures

### D.2.1 Résolution verticale

La résolution verticale en  $Z$  est limitée par le niveau de vibration entre la pointe et l'échantillon ainsi que par le bruit électronique. Dans le cas le plus favorable, elle est inférieure au dixième de nanomètre (donnée du constructeur). La hauteur maximale qui peut être mesurée dépend du piézo-électrique contrôlant la hauteur (débattement de  $15\mu m$ ) et de la forme de la pointe par rapport à l'objet mesuré (lorsque l'on mesure un trou profond et d'une largeur proche de celle de la pointe par exemple).

### D.2.2 Résolution latérale

La résolution latérale est fortement dépendante de la géométrie de la pointe et de celle de l'échantillon. Pour un échantillon très peu rugueux, on se rapproche de la résolution atomique dans le plan de l'échantillon. En ce qui concerne les limites de l'analyse, les céramiques piézo-électriques conçues pour obtenir la plus haute

résolution de déplacement ne permettent pas d'effectuer de grandes amplitudes de balayage. Les plus grands débattements réalisés avec les céramiques piézo-électriques de haute résolution sont de  $100\mu m$  en latéral (X,Y).

## D.3 Interprétation des mesures obtenues

La difficulté en microscopie à force atomique, et en microscopie à sonde locale en général, ne consiste pas seulement à réaliser l'image de la surface d'un échantillon mais aussi à interpréter cette image. Il faut en effet prendre conscience que malgré sa convivialité, il s'agit d'un dispositif expérimental complexe. De nombreux artefacts de mesures peuvent intervenir et donner une fausse idée de la surface. Une belle image n'est pas nécessairement une bonne image. Il faut donc connaître les conditions de travail pour appréhender les erreurs possibles. Nous recensons donc dans cette partie les erreurs possibles en les agrémentant de quelques exemples liés à des problèmes que nous avons rencontré.

### D.3.1 Artefacts de mesure liés à la géométrie de la pointe

L'image obtenue avec une sonde locale est le résultat de la convolution du profil de la pointe avec celui de la surface (voir figure D.5). La géométrie de la pointe doit ainsi être bien connue pour interpréter les images obtenues.

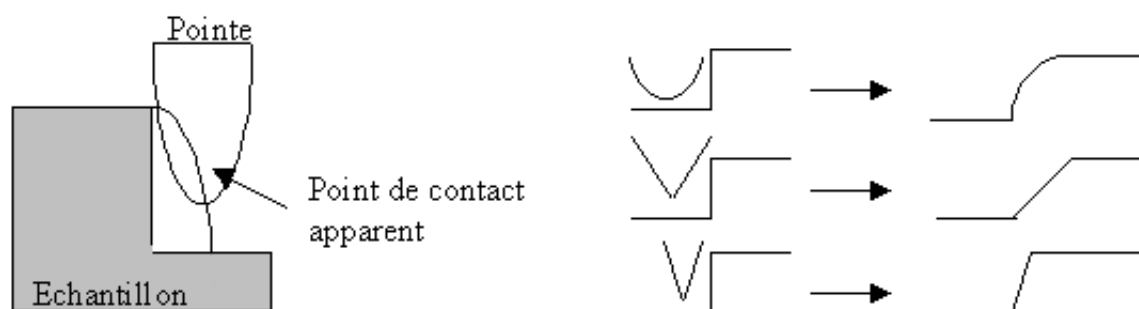


FIG. D.5 – Artefact de mesure entre une pointe et une marche de tailles voisines

L'image de sillons profonds et étroits par rapport aux dimensions de la pointe, ou de structures convexes de petites dimensions, peut contenir des artefacts de mesure comme le montre la figure D.6. Lorsque la largeur de la pointe ne permet pas de suivre exactement la topographie, on obtient un lissage de la surface dans le cas de structures concaves et une largeur apparente de l'objet importante dans le cas de structures convexes. La vitesse de balayage joue également un rôle dans ces artefacts de mesure.

Une pointe comportant un défaut de fabrication ou une pointe cassée peut également induire des artefacts de mesure, nous en présentons un exemple dans

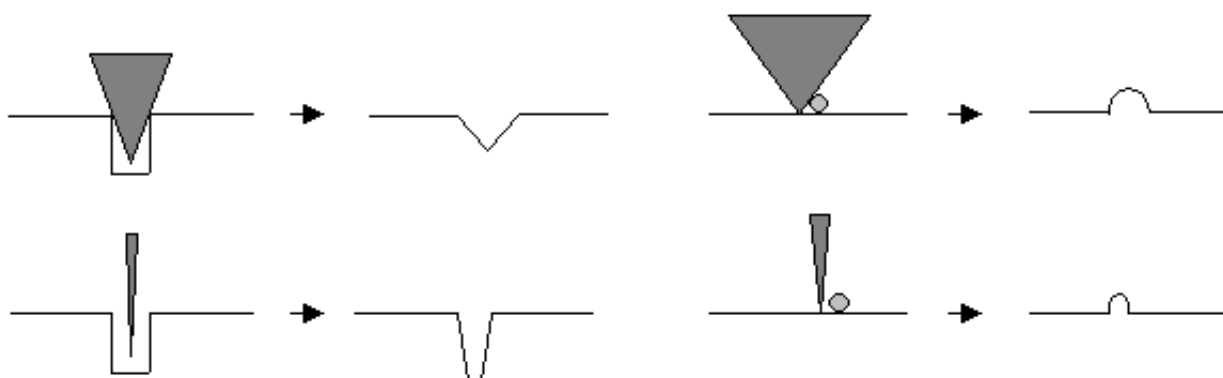


FIG. D.6 – Exemples de distorsion concave et convexe obtenue avec différentes largeurs de pointe

la figure D.7. Si la pointe cassée rencontre un défaut isolé et petit par rapport à la pointe, on image alors la pointe cassée : la figure D.7 laisse supposer que la pointe (de forme pyramidale) s'est cassée nettement, formant ainsi une nouvelle pointe de section carrée.

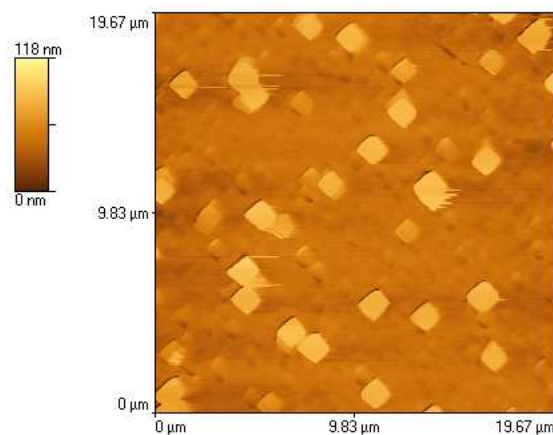


FIG. D.7 – Image d'un substrat obtenue avec une pointe pyramidale cassée.

### D.3.2 Effets dus à l'échantillon

Lors d'un endommagement laser, il se produit parfois des éjections de matière. La contamination de l'échantillon peut alors provoquer des problèmes d'adhérence entre la pointe et l'échantillon (sauts de pointe) induisant des erreurs de mesure comme le montre la figure D.8.

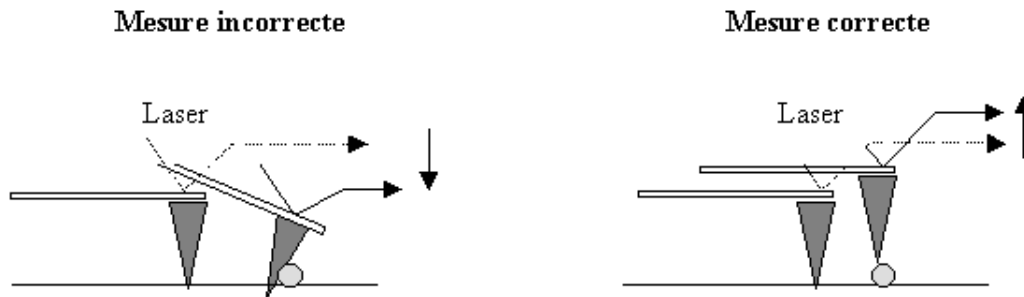


FIG. D.8 – Artefact lié aux problèmes d’adhérence entre la pointe et la surface

Des débris peuvent également s’accrocher sur la pointe, ce qui modifie sa forme et par conséquent l’image finale. L’ajustement de la vitesse de balayage, et de la force de maintien de la pointe permet dans beaucoup de cas de s’affranchir de ces problèmes. Un exemple est présenté figure D.9 : l’image d’une zone endommagée comportant des retombées de matière est d’abord effectuée avec une vitesse lente ( $70\mu\text{m}/\text{s}$ ), le balayage est arrêté au milieu de l’image. L’image de la zone est ensuite reprise avec une vitesse plus rapide ( $150\mu\text{m}/\text{s}$ ) par rapport au premier balayage. On peut alors observer sur l’image finale que la pointe a déplacé les particules lors du balayage lent, modifiant ainsi l’échantillon. Un balayage plus rapide a permis de d’éliminer ce problème. Notons que de cette façon il est possible de vérifier que les particules observées sont des retombées de matière et non des déformations de la surface.

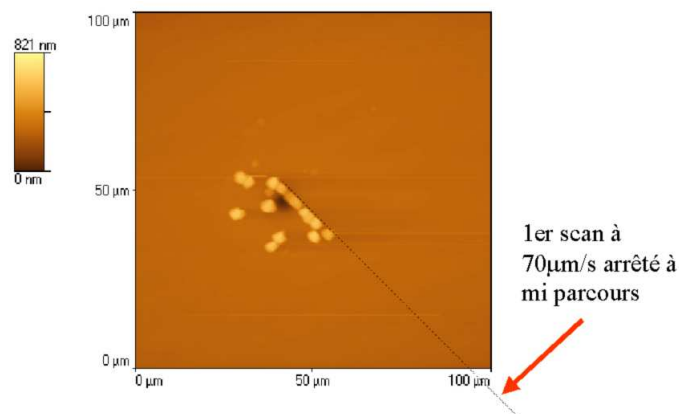


FIG. D.9 – Image d’une zone endommagée (balayage à  $150\mu\text{m}/\text{s}$ ) après un passage de la pointe sur la moitié de la zone à  $70\mu\text{m}/\text{s}$

### D.3.3 Calibration

Nous avons vu que les mesures obtenues par AFM sont soumises à de nombreux artefacts. Néanmoins une bonne connaissance de ces effets permet de bien interpréter les images obtenues. Dans ce sens les pointes utilisées sont testées régulièrement sur des échantillons calibrés. Ces échantillons sont des grilles ou des plots avec des largeurs, hauteurs, profondeurs bien connues. Un exemple de mesure sur un tel échantillon est donné figure D.10.

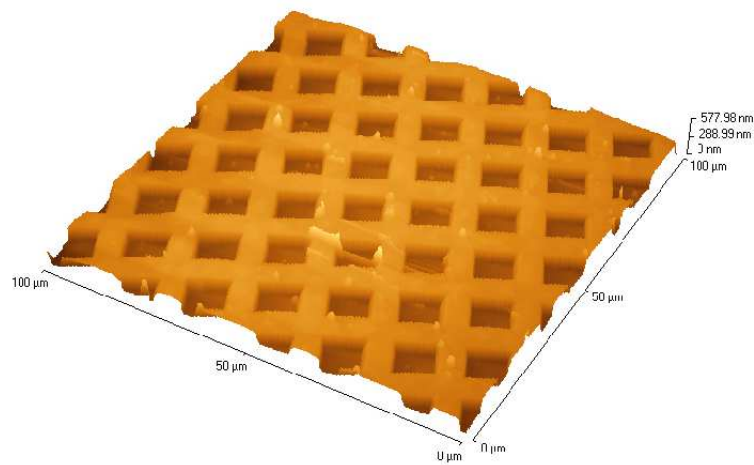


FIG. D.10 – Image AFM d'un échantillon test

Pour réaliser une mesure délicate, une procédure rigoureuse consiste à faire une image de cet échantillon test avant et après la mesure réelle.

# Annexe E

## Calculs de thermique

### E.1 Cas du dioptre : transformées de Laplace inverse de $\widehat{T}_1(z, p)$ et $\widehat{T}_2(z, p)$

Afin de trouver les expressions analytiques de  $T_1(z, t)$  et  $T_2(z, t)$ , il nous faut trouver les transformées de Laplace inverses de 6.17 et 6.18 :

$$\widehat{T}_1(z, p) = \frac{S_0\sqrt{a_2}}{\frac{b_1}{\sqrt{a_1}} + \frac{b_2}{\sqrt{a_2}}} \frac{e^{\sqrt{\frac{p}{a_1}}z}}{p\sqrt{p}(\sqrt{p} + \sqrt{a_2}\gamma)} \quad (\text{E.1})$$

$$\begin{aligned} \widehat{T}_2(z, p) &= \frac{\frac{b_2}{\sqrt{a_2}} - \frac{b_1}{\sqrt{a_1}}}{\frac{b_1}{\sqrt{a_1}} + \frac{b_2}{\sqrt{a_2}}} \frac{S_0a_2}{2b_2} \frac{e^{-\sqrt{\frac{p}{a_2}}z}}{p\sqrt{p}(\sqrt{p} + \sqrt{a_2}\gamma)} \\ &+ \frac{S_0a_2}{2b_2} \left( \frac{e^{-\gamma z} - e^{-\sqrt{\frac{p}{a_2}}z}}{p\sqrt{p}(\sqrt{p} - \sqrt{a_2}\gamma)} + \frac{e^{-\gamma z}}{p\sqrt{p}(\sqrt{p} + \sqrt{a_2}\gamma)} \right) \end{aligned} \quad (\text{E.2})$$

Nous cherchons donc la transformée de Laplace inverse de :

$$A(p) = \frac{e^{-\alpha\sqrt{p}}}{p\sqrt{p}(\sqrt{p} + \beta)} \quad (\text{E.3})$$

Posons

$$B(p) = \frac{e^{-\alpha p}}{p^2(p + \beta)} \quad (\text{E.4})$$

On sait que [134] :

$$\frac{1}{p^2(p + \beta)} \xrightarrow{T.L.^{-1}} \frac{t}{\beta} - \frac{H(t)}{\beta^2} - \frac{e^{-\beta t}}{\beta^2} \quad (\text{E.5})$$

nous avons donc :

$$B(p) \xrightarrow{T.L.^{-1}} \frac{t - \alpha}{\beta} - \frac{H(t - \alpha)}{\beta^2} - \frac{e^{-\beta(t - \alpha)}}{\beta^2} \quad (\text{E.6})$$



Or on sait que si  $G(p) \xrightarrow{T.L.^{-1}} G(t)$  alors  $\frac{G(\sqrt{p})}{\sqrt{p}} \xrightarrow{T.L.^{-1}} \frac{1}{\sqrt{\pi t}} \int_0^{+\infty} g(\tau) e^{-\frac{\tau^2}{4t}} d\tau$  [134]

En appliquant ce théorème à  $B(p)$ , il vient alors :

$$\frac{e^{-\alpha\sqrt{p}}}{p\sqrt{p}(\sqrt{p} + \beta)} \xrightarrow{T.L.^{-1}} \frac{1}{\sqrt{\pi t}} \int_0^{+\infty} \left( \frac{\tau - \alpha}{\beta} - \frac{H(\tau - \alpha)}{\beta^2} - \frac{e^{-\beta(\tau - \alpha)}}{\beta^2} \right) e^{-\frac{\tau^2}{4t}} d\tau \quad (E.7)$$

En calculant l'intégrale nous obtenons finalement :

$$A(p) \xrightarrow{T.L.^{-1}} \frac{2\sqrt{t}}{\sqrt{\pi}\beta} e^{-\frac{\alpha^2}{4t}} - \frac{(1 + \beta\alpha)}{\beta^2} \operatorname{erfc} \left( \frac{\alpha}{2\sqrt{t}} \right) + \frac{e^{\beta\alpha} e^{\beta^2 t}}{\beta^2} \operatorname{erfc} \left( \beta\sqrt{t} + \frac{\alpha}{2\sqrt{t}} \right) \quad (E.8)$$

Ainsi, après transformation de Laplace inverse,  $T_1(z, t)$  et  $T_2(z, t)$  peuvent s'exprimer de la façon suivante :

$$T_1(z, t) = \frac{S_0 \sqrt{a_2}}{\frac{b_1}{\sqrt{a_1}} + \frac{b_2}{\sqrt{a_2}}} F \left( -\frac{z}{\sqrt{a_1}}, \sqrt{a_2} \gamma \right) \quad (E.9)$$

$$T_2(z, t) = \frac{\frac{b_2}{\sqrt{a_2}} - \frac{b_1}{\sqrt{a_1}}}{\frac{b_1}{\sqrt{a_1}} + \frac{b_2}{\sqrt{a_2}}} \frac{a_2 S_0}{2b_2} F \left( \frac{z}{\sqrt{a_2}}, \sqrt{a_2} \gamma \right) + \frac{a_2 S_0}{2b_2} \left( e^{-\gamma z} (F(0, -\gamma\sqrt{a_2}) + F(0, \gamma\sqrt{a_2})) - F\left(\frac{z}{\sqrt{a_2}}, -\gamma\sqrt{a_2}\right) \right) \quad (E.10)$$

Avec :

$$F(\alpha, \beta) = \frac{2\sqrt{t}}{\sqrt{\pi}\beta} e^{-\frac{\alpha^2}{4t}} - \frac{(1 + \beta\alpha)}{\beta^2} \operatorname{erfc} \left( \frac{\alpha}{2\sqrt{t}} \right) + \frac{e^{\beta\alpha} e^{\beta^2 t}}{\beta^2} \operatorname{erfc} \left( \beta\sqrt{t} + \frac{\alpha}{2\sqrt{t}} \right) \quad (E.11)$$

## Annexe F

# Morphologies d'endommagement du Nickel en couche mince

F.1 Morphologies d'endommagement d'une couche de nickel (Irradiation d'une durée de 3s avec des énergies croissantes)

ANNEXE F. MORPHOLOGIES D'ENDOMMAGEMENT DU NICKEL EN COUCHE MINCE

Densité de puissance	Image AFM	Profil (au centre de l'image)
$10^4 W/cm^2$		
$1.2 \cdot 10^4 W/cm^2$		
$1.6 \cdot 10^4 W/cm^2$		

TAB. F.1 – résultats de tirs de durée 3s, réalisés sur une couche de nickel d'épaisseur  $1\mu m$ , avec différentes énergies.

# Bibliographie

- [1] P. Volto. *Etude de l'endommagement laser dans les couches minces optiques*. PhD thesis, Université d'Aix-Marseille III, 1998.
- [2] Determination of laser-damage threshold of optical surfaces-part 1 : 1-on-1 test. Norm ISO 11254, 2000.
- [3] F. Guignard. *Etude de l'endommagement de matériaux optiques transparents dans le visible soumis à un rayonnement laser impulsif 10,6  $\mu\text{m}$* . PhD thesis, Institut National des Sciences appliquées de Toulouse, 1997.
- [4] H. Scholze. *Le verre*. Institut du verre, Paris, 2nd edition, 1980.
- [5] P.P. Hel and D.F. Edwards. Optical glass fabrication technology. 2 : Relationship between surface roughness and subsurface damage. *Applied Optics*, 26 :4677–4680, 1987.
- [6] K.H. Fielder. *The Properties of Optical Glass*, chapter Processing (grinding and polishing), pages 247–261. Springer, 1995.
- [7] United States Patent and Trademark Office. <http://www.uspto.gov/patft/index.html>.
- [8] Determination of laser-damage threshold of optical surfaces-part 2 : S-on-1 test. Norm ISO 11254, 2001.
- [9] M.D. Feit, A.M. Rubenchik, M.R. Kozlowski, F.Y. Genin, S. Schwartz, and L.M. Sheehan. Extrapolation of test data to predict performance of large-area optics at 355 nm. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1998*, volume 3578 of *Proc. SPIE*, pages 226–234, 1999.
- [10] R.Wood. *Laser Damage in Optical Materials*. Adam Hilger Series on optics and optoelectronics, 1986.
- [11] E. Yablonovitch and N. Bloembergen. Avalanche ionization and the limiting diameter of filaments induced by light pulses in transparent media. *Physical Review Letters*, 29 :907–910, 1972.
- [12] S. Brawer. Phenomenological theory of laser damage in insulators. *Physical Review B*, 20 :3422–3441, 1979.

- [13] A.S. Epifanov. Theory of electron-avalanche ionization induced in solids by electromagnetic waves. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 17 :2018–2022, 1981.
- [14] M. Sparks, D.L. Mills, R. Warren, T. Holstein, A.A. Maradudin, L.J. Sham, E. Loh, and D.F. King. Theory of electron-avalanche breakdown in solids. *Physical Review B*, 24 :3519–3536, 1981.
- [15] A.S. Epifanov and S.V. Garnov. Statistical approach to theory of electron-avalanche ionization in solids. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 17 :2023, 1981.
- [16] W. Becker, J.K. McIver, and A.H. Guenther. Initiation of laser induced damage by small metallic particles. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, D. Milam, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Damage in laser materials : 1987*, volume 756 of *NIST (U.S.) Spec. Publ.*, pages 603–610, 1988.
- [17] A. Schmid, P. Kelly, and P. Bráunlich. Optical breakdown in alkali halides. *Physical Review B*, 16 :4569–4582, 1977.
- [18] D. Arnold and E. Cartier. Theory of laser-induced free-electron heating and impact ionization in wide-band-gap solids. *Physical Review B*, 46 :15102, 1992.
- [19] N. Bloembergen. Roles of cracks, pores, and absorbing inclusions on laser induced damage threshold at surfaces of transparent dielectrics. *Applied Optics*, 12 :661–664, 1973.
- [20] F. Bonneau, P. Combis, J. Vierne, and G. Daval. Simulations of laser damage of  $\text{SiO}_2$  induced by a spherical inclusion. In G.J. Exarhos, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, K.L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 2000*, volume 4347 of *Proc. SPIE*, pages 308–315, 2001.
- [21] F.Y. Genin, A. Salleo, T.V. Pistor, and L.L. Chase. Role of light intensification by cracks in optical breakdown on surfaces. *JOSA A*, 18 :2607–2616, 2001.
- [22] H. Bercegol, F. Bonneau, P. Bouchut, P. Combis, J. Donohue, L. Gallais, L. Lemaître, C. Le Diraison, M. Loiseau, J. Y. Natoli, C. Pellé, M. Perra, J. L. Rullier, J. Vierne, and H. Ward. Laser ablation of fused silica induced by gold nano-particles - comparison of simulations and experiments at  $\lambda = 351$  nm. In *HPLA (High Power Laser Ablation)*, 2002.
- [23] S. Papernov, A.W. Schmid, P. Krishnan, and L. Tsybeskov. Laser-induced bulk damage in various types of vitreous silica. In G.J. Exarhos, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, K.L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1999*, volume 3902 of *Proc. SPIE*, pages 146–165, 2000.

- 
- [24] P. Audebert, PH. Daguzan, A. Dos Santos, J.C. Gauthier, J.P. Geindre, S. Guizard, G. Hamoniaux, K. Krastev, P. Martin, G. Petite, and A. Antonetti. Space-time observation of an electron gas in  $\text{SiO}_2$ . *Physical Review Letters*, 73 :1990–1993, 1994.
- [25] M. Li, S. Menon, J.P. Nibarger, and G.N. Gibson. Ultrafast electron dynamics in femtosecond optical breakdown in dielectrics. *Physical Review Letters*, 82 :2394–2397, 1999.
- [26] S. Juodkazis, A. Marcinkevičius, M. Watanabe, V. Mizeikis, S. Matsuo, and H. Misawa. Sub-picosecond optical damaging of silica : time resolved measurements of light induced damage threshold. In G.J. Exarhos, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, K.L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 2000*, volume 4347 of *Proc. SPIE*, pages 212–221, 2001.
- [27] S.R. Foltyn. Spotsizes effects in laser damage testing. In H.E. Bennet, A.H. Guenther, D. Milam, and B.E. Newnam, editors, *Damage in laser materials : 1982*, Nat. Bur. Stand. (U.S.) Spec. Publ., pages 368–379, 1983.
- [28] J.O. Porteus and S.C. Seitel. Absolute onset of optical surface using distributed defect ensembles. *Applied Optics*, 23 :3796–3805, 1984.
- [29] R.M. O’Connell. Onset threshold analysis of defect-driven surface and bulk laser damage. *Applied optics*, 31 :4143–4153, 1992.
- [30] M.R. Kozlowski and R. Chow. The role of defects in laser multilayer coatings. In H.E. Bennet, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1993*, volume 2114 of *Proc. SPIE*, pages 640–649, 1994.
- [31] S. Papernov and A.W. Schmid. Heat transfer from localized absorbing defects to the host coating material in  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ . In H.E. Bennett, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1996*, volume 2966 of *Proc. SPIE*, pages 315–325, 1997.
- [32] J. Dijon, T. Poiroux, and C. Desrumaux. Nano absorbing centers : a key point in laser damage of thin films. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1996*, volume 2966 of *Proc. SPIE*, pages 315–325, 1997.
- [33] J.Y. Natoli, P. Volto, M. Pommies, G. Albrand, and C. Amra. Localized laser damage test facility at Ioscm : real time optical observation and quantitative afm study. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1997*, volume 3244 of *Proc. SPIE*, pages 76–85, 1998.
- [34] H. Bercegol. Statistical distribution of laser damage and spatial scaling law for a model with multiple defects cooperation in damage. In G.J. Exarhos,

- A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, K.L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1999*, volume 3902 of *Proc. SPIE*, pages 339–346, 2000.
- [35] R.W. Hopper and D.R. Uhlmann. Mechanism of inclusion damage in laser glass. *Journal of Applied Physics*, 41 :4023–4037, 1970.
- [36] A. Fournier, C. Cordillot, D. Bernardino, O. Lam, A. Roussel, B. Pinot, B. Geenen, H. Leplan, and W. Alexandre. Characterization of hr coatings for the megajoule laser transport mirrors. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1997*, volume 3244 of *Proc. SPIE*, pages 327–341, 1998.
- [37] A.P. Gagarin, L.B. Glebov, and V.G. Dokuchaev. Darkening of silicate glass on exposure to radiation emitted by an erosion laser plasma. *Soviet Journal of Quantum Electronics*, 7 :1136, 1977.
- [38] M.D. Feit, A.M. Rubenchik, D.R. Faux, R.A. Riddle, A. Shapiro, D.C. Eder, B.M. Penetrante, D. Milam, F.Y. genin, and M.R. Kozlowski. modeling of laser damage initiated by surface contamination. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1996*, volume 2966 of *Proc. SPIE*, pages 417–424, 1997.
- [39] M. Poulingue. *Le rôle des nodules dans l'endommagement laser de miroirs à 1.06 $\mu$ m*. PhD thesis, Institut national polytechnique de Grenoble, 1999.
- [40] M.R. Kozlowski, M. Staggs, M. Balooch, R. Tench, and W. Siekhaus. The surface morphology of as-deposited and laser-damaged dielectric mirror coatings studied in situ by atomic force microscope. In *Scanning microscopy instrumentation (1991)*, volume 1556 of *Proc. SPIE*, pages 68–78, 1991.
- [41] R.J. Tench, M.R. Kozlowski, and R. Chow. Investigation of the microstructure of coatings for high powers lasers by non-optical techniques. In H.E. Bennet, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1993*, volume 2114 of *Proc. SPIE*, pages 596–602, 1994.
- [42] J. Dijon, B. Rafin, C. Pellé, J. Hue, G. Ravel, and B. André. 100-j/cm<sup>2</sup> 1.06 $\mu$ m mirrors. In G.J. Exarhos, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, K.L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1999*, volume 3902 of *Proc. SPIE*, pages 158–168, 2000.
- [43] J. Hue. *Comportement de miroirs soumis au rayonnement continu de lasers de hautes puissances à gaz carbonique. Application à la tenue au flux laser*. PhD thesis, Université Joseph Fourier-Grenoble I, 1993.
- [44] E. Duloisy. *Etude thermomécanique de l'endommagement de miroirs multicouches soumis au rayonnement continu de lasers de puissance*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Grenoble, 1995.

- 
- [45] R.M. O'Connell, T.F. Deaton, and T.T. Salto. Single and multiple shot laser damage properties of commercial grade pmma. *Applied Optics*, 23 :682–688, 1984.
- [46] P.K. Bandyopadhyay and L.D. Merkle. Laser-induced damage in quartz : A study of the influence of impurities and defects. *Journal of Applied Physics*, 63 :1392–1398, 1988.
- [47] L.D. Merkle, N. Koumvakalis, and M. Bass. Laser-induced bulk damage in  $SiO_2$  at 1.064, 0.532, and 0.355  $\mu m$ . *Journal of Applied Physics*, 55 :772–775, 1984.
- [48] S.C. Jones, p. Braunlich, R.T. Casper, and X.A. Shin. Recent progress on laser-induced modifications and intrinsic bulk damage of wide-gap optical materials. *Optical Engineering*, 28 :1039–1068, 1989.
- [49] M. Bass and H.H. Barrett. Laser-induced damage probability at 1.06 $\mu m$  and 0.69 $\mu m$ . *Applied Optics*, 12 :690–699, 1973.
- [50] M. Bass and H.H. Barrett. Avalanche breakdown and the probabilistic nature of laser-induced damage. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 8 :338–343, 1972.
- [51] S.B. Eron'ko, S.N. Zhurkov, and A. Chmel. Kinetics of accumulation of damage in transparent insulators subjected to repeated laser irradiation. *Soviet Physics : Solid State*, 20 :2064–2066, 1978.
- [52] L.D. Merkle, M. Bass, and R.T. Swimm. Multiple pulse laser-induced bulk damage in crystalline and fused quartz at 1.064 and 0.532 $\mu m$ . *Optical Engineering*, 22 :405, 1983.
- [53] A. Chmel, S.B. Eronko, A.M. Kondyrev, and V.Y. Nazarova. Optical resistance of sapphire. *Journal of Material Science*, 28 :4673–4680, 1993.
- [54] L.F.D. Merkle and D. Kitriotis. Temperature dependence of laser-induced bulk damage in  $SiO_2$  and borosilicate glass. *Physical review B*, 38 :1473–1482, 1988.
- [55] D. Kitriotis and L.D. Merkle. Multipulse laser-induced damage phenomena in silicates. *Applied Optics*, 28 :949–958, 1989.
- [56] N. Kuzuu, N. Umemura, A. Nagafuchi, K. Yagi, K. Ochi, and K. Yoshida. Laser-induced bulk damage in various types of vitreous silica. In G.J. Exarhos, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, K.L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1999*, volume 3902 of *Proc. SPIE*, pages 398–405, 2000.
- [57] M.W. Hooker, M.E. Thomas, S.A. Wise, and N.D. Tappan. A ruggedness evaluation of procedures for damage threshold testing of optical materials. Technical report, NASA, 1995.
- [58] A.E. Chmel. Fatigue laser-induced damage in transparent materials. *Materials Science nad Engineering B*, 49 :175–190, 1997.



- [59] A. Kusov, A. Kondyrev, and A. Chmel. *Journal of Physic : Condensed materials*, 2 :4067, 1990.
- [60] A. Silins. Defect generation in fused silica under high intensity laser interaction. In G.J. Exarhos, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, K.L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 2000*, volume 4347 of *Proc. SPIE*, pages 207–211, 2001.
- [61] L. Skuja, H. Hosono, and M. Hirano. Laser-induced color centers in silica. In G.J. Exarhos, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, K.L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 2000*, volume 4347 of *Proc. SPIE*, pages 155–168, 2001.
- [62] C.R. Wolfe, M.R. Kozlowski, J.H. Campbell, M. Staggs, and F. Rainer. Permanent laser conditioning of thin film optical materials. United States Patent, 1995.
- [63] E. Eva, K. Mann, N. Kaiser, B. Anton, R. Henking, D. Ristau, P. Weissbrodt, D. Mademann, L. Raupach, and E. Hacker. Laser conditioning of laf3/mgf2 dielectric coatings at 248nm. *Applied Optics*, 35 :5613–5619, 1996.
- [64] P.A. Temple, W.H. Lowdermilk, and D. Milam. Carbon dioxide laser polishing of fused silica surfaces for increased laser-damage resistance at 1064nm. *Applied Optics*, 21 :3249–3255, 1982.
- [65] M.R. Kozlowski, C.R. Wolfe, M.C. Staggs, and J.H. Campbell. Large area laser conditioning of dielectric thin film mirrors. In H.E. Bennett, L.L. Chase, A.H. Guenther, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1989*, volume 1438 of *Proc. SPIE*, pages 376–390, 1990.
- [66] J.E. Swain, S. Stokowski, D. Milam, and G. Kennedy. The effect of baking and pulsed laser irradiation on the damage threshold of potassium dihydrogen phosphate glass. *Applied Physic Letters*, 41 :12, 1982.
- [67] M. C. Staggs, M. Balooch, M. R. Kozlowski, and W. J. Siekhaus. In situ atomic force microscopy of laser-conditioned and laser-damaged hf02/si02 dielectric mirror coatings. In H.E. Bennett, L.L. Chase, A.H. Guenther, B.E. Newnam, and M. J. Soileau, editors, *Laser-Induced Damage in Optical Materials : 1991*, volume 1624 of *Proc. SPIE*, pages 1–12, 1992.
- [68] S.D. Allen, J.O. Porteus, and W.N. Faith. Infrared laser-induced desorption of h2o and hydrocarbons from optical surfaces. *Applied Physic Letters*, 41 :215, 1982.
- [69] M.E. Frink and J.W. Arenberg. temporary laser damage threshold enhancement by laser conditioning of antireflection-coated glass. *Applied Physic Letters*, 51 :415, 1987.

- 
- [70] M. Schildbach, L. L. Chase, and A. V. Hamza. Investigation of neutral atom and ion emission during laser conditioning of multilayer hf02-si02 coatings. In H.E. Bennett, L.L. Chase, A.H. Guenther, B.E. Newnam, and M. J. Soileau, editors, *Laser-Induced Damage in Optical Materials : 1990*, volume 1441 of *Proc. SPIE*, 1992.
- [71] R.M. Wood and R.J. Chad. Laser-induced ( $1.064 \mu\text{m}$ ) damage threshold measurement at the gec research laboratories, hirst research centre. *Applied Optics*, 23 :3779–3781, 1984.
- [72] J. Y. Natoli, L. Gallais, H. Akhouayri, and C. Amra. A quantitative study of laser damage probabilities in silica and calibrated liquids : Comparison with theoretical prediction. In G.J. Exarhos, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, K.L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 2000*, volume 4347 of *Proc. SPIE*, pages 295–305, 2001.
- [73] J.B. Franck, S.C. Seitel, V.A. Hodgkin, W.N. Faith, and J.O. Porteus. Automated pulsed testing using a scatter-probe damage monitor. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, D. Milam, and B.E. Newnam, editors, *Damage in laser materials : 1984*, volume 727 of *Nat. Bur. Stand. (U.S.) Spec. Publ.*, pages 71–76, 1986.
- [74] J. Hue, J. Dijon, and P. Lyan. The cmo yag laser damage test facility. In A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1995*, volume 2714 of *Proc. SPIE*, pages 102–113, 1996.
- [75] R. SharpIII and Mike Runkel. Automated damage onset analysis techniques applied to kdp damage and the zeus small area damage test facility. In G.J. Exarhos, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, K.L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1999*, volume 3902 of *Proc. SPIE*, pages 361–368, 2000.
- [76] K. Mann and H. Gerhardt. automated damage testing facility for excimer laser optics. In H.E. Bennett, L.L. Chase, A.H. Guenther, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1989*, volume 1438 of *Proc. SPIE*, pages 39–46, 1990.
- [77] A.A. Said, T. Xia, A. Dogariu, M.J. Soileau, E.W. Van Stryland, and M. Mohebi. measurement of the optical damage threshold in fused quartz. *Applied Optics*, 34 :3374–3376, 1995.
- [78] F. Loewenthal, R. Tommasini, and J.E. Balmer. Single-shot measurement of laser-induced damage thresholds of thin films coatings. *Optics Communications*, 152 :168–174, 1998.
- [79] J.Hue, J. Dijon, P. Garrec, L. Poupinet, and P. Lyan. Beam characterization : application to the laser damage threshold. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-*

- Induced damage in Optical Materials : 1998*, volume 3578 of *Proc. SPIE*, 1999.
- [80] B.C. Stuart, M.D. Feit, S. Herman, B.W. Shore, and M.D. Perry. Optical ablation by high-power short-pulse lasers. *Journal of the Optical Society of America B*, 13 :459–468, 1996.
- [81] L. Sheehan, M. Kozlowski, and F. Rainer. Diagnostics for the detection and evaluation of laser induced damage. In H.E Bennet, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1994*, volume 2428 of *Proc. SPIE*, pages 13–22, 1995.
- [82] K.H. Guenther, T.W. Humpherys, J; Balmer, J.R. Bettis, E. Casparis, J. Ebert, M. Eichner, A.H. Guenther, E. Kiesel, R. Kuehnel, D. Milam W. Rysek, S.C. Seitel, A.F. Stewart, H. Weber, H.P. Weber, G.R. Wirtenson, and R.W. Wood. 1.06  $\mu\text{m}$  laser damage of thin film optical coatings : a round robin experiment involving various pulse lengths and beam diameters. *Applied Optics*, 23 :3743–3752, 1984.
- [83] J.W. Arenberg, M.E. Frink, D.W. Mordaunt, G. Lee, S.C. Seitel, and A. Teppo. Correlating laser damage tests. *Applied Optics*, 28 :123–126, 1989.
- [84] E.W. Van Stryland, M.J. Soileau, A.L. Smirl, and W.E. Williams. Pulse-width and focal-volume dependence of laser-induced breakdown. *Physical Review B*, 23 :2144–2151, 1981.
- [85] D. Du, X. Liu, G. Korn, J. Squier, and G. Mourou. Laser-induced breakdown by impact ionization in  $\text{SiO}_2$  with pulse widths from 7 ns to 150 fs. *Applied Physics Letters*, 64 :3071–3073, 1994.
- [86] B.C. Stuart, M.D. Feit, A.M. Rubenchik, B.W. Shore, and M.D. Perry. Pulse-width and focal-volume dependence of laser-induced breakdown. *Physical Review Letters*, 74 :2248–2251, 1995.
- [87] N. Kuzuu, K. Yoshida, H. Yoshida, T. Kamimura, and N. Kamisugi. Laser-induced bulk damage in various types of vitreous silica at 1064, 532, and 266nm : evidence of different damage mechanisms between 266-nm and longer wavelengths. *Applied Optics*, 38 :2510–2515, 1999.
- [88] R.H. Picard, D. Milam, and R.A. Bradbury. Statistical analysis of defect-caused laser damage in thin films. *Applied Optics*, 16 :1563–1571, 1977.
- [89] J.R. Bettis, R.A. House, and A.H. Guenther. Spot size and pulse duration dependance of laser-induced damage. In A.J. Glass and H.E. Bennett, editors, *Damage in laser materials : 1976*, volume 462 of *Nat. Bur. Stand. (U.S.) Spec. Publ.*, pages 338–345, 1976.
- [90] M.J. Soileau, M. Bass, and P.H. Klein. frequency and focal volume dependence of laser-induced breakdown in wide band gap insulators. In H.E.

- Bennett, A.J. Glass, and A.H. Guenther, editors, *Damage in laser materials : 1979*, volume 568 of *Nat. Bur. Stand. (U.S.) Spec. Publ.*, pages 497–517, 1979.
- [91] E.W. Van Stryland, M.J. Soileau, and A.L. Smirl. Pulse-width and focal volume dependence of laser-induced breakdown. In H.E. Bennett, A.J. Glass, and A.H. Guenther, editors, *Damage in laser materials : 1980*, volume 620 of *Nat. Bur. Stand. (U.S.) Spec. Publ.*, pages 375–384, 1980.
- [92] J. Hue, , P. Garrec, J. Dijon, and P. Lyan. R-on-1 automatic mapping : a new tool for laser damage testing. In A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1995*, volume 2714 of *Proc. SPIE*, pages 90–101, 1996.
- [93] M. Reichling, J. Siegel, E. Matthias, H. Lauth, and E. Hacker. Photoacoustic studies of laser damage in oxide thin films. *Thin Solid Films*, 253 :333–338, 1994.
- [94] L. Martin, A.M Norton, and G. Thomas. Ultrasonic monitoring of laser damage in fused silica. *Applied Physics Letters*, 78 :3403–3405, 2001.
- [95] S. Petzoldt, A.P. Elg, M. Reichling, J. Reif, and E. Matthias. Surface laser damage thresholds determined by photoacoustic deflection. *Applied Physic Letters*, 53 :2005–2007, 1988.
- [96] J. Y. Natoli, L. Gallais, H. Akhouayri, and C. Amra. Laser-induced damage of materials in bulk, thin films and liquid forms. *Applied Optics*, 41 :3156–3166, 2002.
- [97] F.Y. Genin, C.J. Stolz, and M.R. Kozlowski. Growth of laser-induced damage during repetitive illumination of  $hfo_2$ - $sio_2$  multilayer mirror and polarizer coatings. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1996*, volume 2966 of *Proc. SPIE*, pages 273–281, 1997.
- [98] T. Bundschuh, R. Knopp, and J.I. Kim. Laser-induced breakdown detection (libd) of aquatic colloids with different laser systems. *Colloids and surfaces A : physical and engineering aspects*, 177 :47–45, 2001.
- [99] P.Volto, A. Roussel, C. Cordillot, D. Bernardino, and H. Bercegol. Refined statistical measurements of laser damage. In G.J. Exarhos, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, K.L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1999*, volume 3902 of *Proc. SPIE*, pages 332–338, 2000.
- [100] R. Bénichou N. Boy J.-P. Pouget G.Demengel, P. Bénichou. *Probabilités, statistique interférentielle, fiabilité. Outils pour l'ingénieur*. Ellipses.
- [101] C. Amra. Irrégularités structurelles en optique - diffusion optique. Cours de DEA Optique, Image et Signal, 1999.

- [102] H. Bercegol. What is laser conditioning? a review focused on dielectric multilayers. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1998*, volume 3578 of *Proc. SPIE*, pages 339–346, 1999.
- [103] P.N. Favennec. *L'implantation ionique pour la microélectronique et l'optique*. Masson, 1993.
- [104] P.Fichet, P. Mauchien, J.F. Wagner, and C. Moulin. Quantitative elemental determination in water and oil by laser induced breakdown spectroscopy. *Analytica chimica acta*, 429 :269–278, 2001.
- [105] A.A. Oraevsky, S.L. Jacques, and F.K. Tittel. Mechanism of laser ablation foe aqueous media irradiated under confined-stress conditions. *Journal of Applied Physic*, 78 :1281–1290, 1995.
- [106] C. Walther, C. Bitea, W. Hauser, J.I. Kim, and F.J. Scherbaum. Laser induced breakdown detection for the assesment of colloid mediated radio-nuclide migration. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 2002.
- [107] F.Y. Génin, M.D. Feit, M.R. Kozlowski, A.M. Rubenchik, A. Salleo, and J. Yoshiyama. Rear surface laser damage on 355nm silica optics owing to fresnel diffraction on front-surface contamination particles. *Applied optics*, 39 :3654–3663, 2000.
- [108] R. Coelho and B. Aladenize. *Les diélectriques*. Hermes, 1993.
- [109] R. Parmentier. *Filtre interférentiel à bande étroite accordable. Principe de base et applications au secteur des télécommunications optiques*. PhD thesis, Université d'Aix-Marseille III, 2002.
- [110] A. Busson. *Lois générales de l'électrotechnique*. MASSON, 1962.
- [111] F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier, J. Vierne, H. Ward, H. Bercegol, L. Lamaignère, M. Loiseau, M. Broyer, E. Cottancin, J. Tuailon, M. Pellarin, L. Gallais, J. Y. Natoli, M. Perra, M. Pellin, and M. Savina. Étude expérimentale et modélisation de l'initiation de l'endommagement de la silice sous irradiation laser impulsionnelle. Rapport CEA, ref XXX, 2002.
- [112] F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier, J. Vierne, H. Ward, M. Pellin, M. Savina, M. Broyer, E. Cottancin, J. Tuailon, M. Pellarin, L. Gallais, J. Y. Natoli, M. Perra, H. Bercegol, L. Lamaignère, M.Loiseau, and J. T. Donohue. Study of uv laser interaction with gold nanoparticles embedded in silica. *Applied Physic B*, accepté pour publication.
- [113] H. Hamza, W. Siekhaus, M. Rubenchik, M. Feit, L. Chase, M. Savina, M. Pellin, I. Hutcheon nad C. Nostrand, M. Runkel, B. Choi, M. Staggs, and J. Fluss. Engineered defects for investigation of laser-induced damage of fused silica at 355nm. In G.J. Exarhos, A.H. Guenther, K.L. Lewis, M.J. Soileau, and J.S. Slotz, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 2000*, volume 4679 of *Proc. SPIE*, pages 96–107, 2001.

- 
- [114] S. Papernov, A.W. Schmid, R. Krishnan, and L. Tsybeskov. Using colloidal gold nanoparticles for studies of laser interaction with defects in thin films. In G.J. Exarhos, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, K.L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 2000*, volume 4347 of *Proc. SPIE*.
- [115] J.Y. Natoli. Rapport final sur l'étude d'échantillons test par afm et nomarski en vue d'appréhender l'initiation de l'endommagement de la silice sous irradiation laser impulsienne. Collaboration entre Le DPTA/CEA/DAM -Bruyères-le-Châtel et L'Institut Fresnel-Marseille, 2002.
- [116] F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier, J. Vierne, L. Gallais, J. Y. Natoli, H. Bercegol, L. Lamaignère, and P. Bouchut. Comparison of numerical simulations with experiment on generation of craters in silica by laser. In *Laser-Induced damage in Optical Materials : 2002*, volume à paraître of *Proc. SPIE*, 2002.
- [117] J. Y. Natoli, L. Gallais, M. Perra, F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier, P. Bouchut, and L. Lamaignère. Experimental results of laser interaction with included gold particles in silica at  $1\omega$  and  $3\omega$ . In *Laser-Induced damage in Optical Materials : 2002*, volume à paraître of *Proc. SPIE*, 2002.
- [118] M.R. Kozlowski, R. Mouser, S. Maricle, P. Wegner, and T. Weiland. Laser damage performance of fused silica optical components measured on the beamlet laser at 351nm. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1998*, volume 3578 of *Proc. SPIE*, 1999.
- [119] F. Salleo, R. Chinsio, and F.Y. Genin. Crack propagation in fused silica during uv and ir ns-laser illumination. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1998*, volume 3578 of *Proc. SPIE*, 1999.
- [120] A.Kubota, M.-J. Caturla, J. Stolken, and M. Feit. Densification of fused silica due to shock waves and its implications for 351nm laser induced damage. *Optics Express*, 8 :611–616, 2001.
- [121] A. During. *Microscopie photothermique et endommagement laser*. PhD thesis, Université d'Aix-Marseille III, 2002.
- [122] Bincheng Li and E. Welsch. Configuration optimization and sensitivity comparison among thermal lens, photothermal deflection, and interference detection techniques. In H.E. Bennett, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, B.E. Newnam, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 1998*, volume 3578 of *Proc. SPIE*, 1999.
- [123] L. Wang, M. Yan, W. Siekhaus, and S. Oberhelman. Probing nanodefects in fused silica by near-field scanning optical microscopy. *Journal of Applied Physic*, 84 :3016–3019, 1998.

- [124] A. During, C. Fossati, and M. Commandré. Multi-wavelengths imaging of defects in UV optical materials. *Applied Optics*, 41 :3118–3126, 2002.
- [125] M. Ranier. *Déflexion photothermique et propagation guidée dans les structures planaires multicouches. Etude théorique et expérimentale du coefficient d'atténuation*. PhD thesis, Université de droit, d'économie et des sciences d'Aix-Marseille III, 1994.
- [126] J.Y. Natoli, L. Gallais, C. Amra, and C. Deumié. Méthode non destructive de détection des nano-centres précurseurs de l'endommagement laser. Rapport de contrat d'étude entre l'Institut Fresnel et la DGA (Ref. Marché n° 00.34 042.470.75.65), 2002.
- [127] J. Y. Natoli, C. Deumie, and C. Amra. Alaser-modulated scattering from optical surfaces using faber detection. In G.J. Exarhos, A.H. Guenther, M.R. Kozlowski, K.L. Lewis, and M.J. Soileau, editors, *Laser-Induced damage in Optical Materials : 2000*, volume 4347 of *Proc. SPIE*, pages 128–137, 2001.
- [128] M. Cathelinaud. *Séquences métal-diélectrique pour le filtrage spectral large bande et les absorbeurs de lumière. Détermination d'indice des couches minces métalliques*. PhD thesis, Université d'Aix-Marseille III, 2000.
- [129] F. Lemarquis and G. Marchand. Analytical achromatic design of metal-dielectric absorbers. *Applied Optics*, 37 :103–105, 1999.
- [130] F.P. Incropera and D.P. DeWitt. *Introduction to heat transfer*. John Wiley and Sons, 1996.
- [131] F. Rodier. *Distributions et transformations de Fourier*.
- [132] R. Petit. *L'outil mathématique*. Masson, 1995.
- [133] G. Binning, C.F. Quale, and C. Gerber. Atomic force microscope. *Physical Review Letters*, 56, 1986.
- [134] M. R. Spiegel. *Theory and problems of Laplace transforms*. Schaum, 1965.

## RÉSUMÉ

Cette thèse traite des phénomènes d'endommagement induits sous fort flux laser en régime nanoseconde, dans les composants optiques tels que les verres et les couches minces métalliques et diélectriques. Un travail est tout d'abord effectué sur la métrologie d'endommagement, afin d'obtenir des mesures précises et fiables des courbes de probabilité d'endommagement tout en contrôlant scrupuleusement les conditions de tir. Ensuite, nous montrons que les densités de sites initiateurs de l'endommagement laser sont de quelques dizaines par  $(100\mu m)^3$  dans le volume des verres, et de un par  $\mu m^3$  cube dans le cas des surfaces. Cette analyse associée à une étude morphologique nous permet de discuter de la nature de ces précurseurs et des processus mis en jeu. L'influence de la longueur d'onde (UV à IR) et de tirs répétés est également analysée. Des simulations sont menées afin d'étudier les mécanismes d'initiation d'endommagement sur ces sites. Ces travaux nous permettent d'estimer la taille des sites précurseurs en fonction de leur indice imaginaire et de discuter de leur possible détection.

## ABSTRACT

This thesis deals with laser damage phenomena for nanosecond pulses, in optical components such as glasses, dielectric and metallic thin films. Firstly, a work is done on the laser damage metrology, in order to obtain accurate and reliable measurement of laser-induced damage probabilities, with a rigorous control of test parameters. Then, with the use of a specific model, we find densities of laser damage precursors in the case of bulk glasses (few tens by  $(100\mu m)^3$ ) and in the case of glass surfaces (one precursor by  $\mu m^3$ ). Our analysis is associated to morphology studies by Atomic Force Microscope to discuss about precursor nature and damage process. Influence of wavelength (from 355 to 1064nm) and cumulated shots is also studied. Simulations are performed to study initiation mechanisms on these inclusions. This work gives an estimation of complex index and size of the precursor, which permits to discuss about possible detection by non-destructive tools.

### Mots-clés :

Endommagement laser, claquage, métrologie de l'endommagement laser, seuil de tenue au flux, sites précurseurs, morphologie d'endommagement, microscopie à force atomique, absorption, thermique, initiation, verre, couches minces, croissance d'endommagement, UV, IR.